

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2005 年 10 月 20 日 (20.10.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/097940 A1

(51) 国際特許分類: C09K 11/06, H05B 33/14, 33/22

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/004678

(22) 国際出願日: 2005 年 3 月 16 日 (16.03.2005)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2004-103247 2004 年 3 月 31 日 (31.03.2004) JP

(JP). 加藤 栄作 (KATO, Eisaku) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内 1 丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 押山 智寛 (OSHIYAMA, Tomohiro) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 硯里 善幸 (SUZURI, Yoshiyuki) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 北 弘志 (KITA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

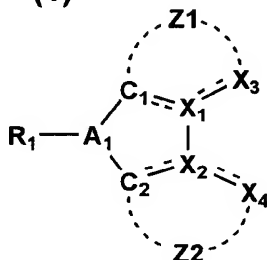
添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE MATERIAL, ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE, DISPLAY AND ILLUMINATING DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置

(1)



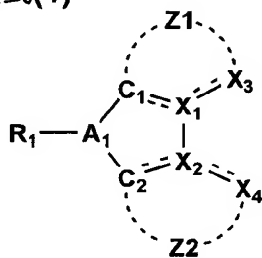
(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent device material which is a metal complex having a specific ligand. Also disclosed is an organic electroluminescent device using such an organic electroluminescent device material which device has high luminous efficiency and long life. Further disclosed are a display and an illuminating device respectively using such an organic electroluminescent device. The organic electroluminescent device material is characterized by containing a metal complex having a ligand represented by the following general formula (1).



## (57) 要約:

本発明によれば、特定の配位子を持つ金属錯体である有機エレクトロルミネッセンス素子材料と該有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いて、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子、及びこれを用いた照明装置及び表示装置を提供することができる。該有機エレクトロルミネッセンス素子材料は、下記一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体を含むことを特徴とするものである。

一般式(1)



## 明 細 書

有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置

### 技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置に関する。

### 背景技術

[0002] 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ(以下、ELDという)がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子という)が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。有機EL素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子であり、数V〜数十V程度の電圧で発光が可能であり、さらに、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

[0003] しかしながら、今後の実用化に向けた有機EL素子においては、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。

[0004] 特許第3093796号明細書では、スチルベン誘導体、ジスチルルアリーレン誘導体又はトリススチルルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成している。

[0005] また、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子(例えば、特開昭63-264692号公報)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する素子(例えば、特開平3-255190号公報)等が

知られている。

- [0006] 以上のように、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であり、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率( $\eta_{\text{ext}}$ )の限界は5%とされている。
- [0007] ところが、プリンストン大より励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子の報告(M. A. Baldo et al., nature, 395巻、151-154ページ(1998年))がされて以来、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている。
- [0008] 例えばM. A. Baldo et al., nature, 403巻、17号、750-753ページ(2000年)、又米国特許第6, 097, 147号明細書などにも開示されている。
- [0009] 励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られる可能性があることから照明用途としても注目されている。
- [0010] 例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ(2001年)等においては、多くの化合物がイリジウム錯体系など重金属錯体を中心に合成検討されている。
- [0011] 又、前述のM. A. Baldo et al., nature, 403巻、17号、750-753ページ(2000年)においては、ドーパントとして、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウムを用いた検討がされている。
- [0012] その他、M. E. Thompsonらは、The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)において、ドーパントとして $\text{L2Ir(acac)}$ 例えば $(\text{ppy})_2\text{Ir(acac)}$ を、又、Moon-Jae Youn, Og, Tet suo Tsutsui等は、やはり、The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)において、ドーパントとして、トリス(2-(p-トリル)ピリジン)イリジウム( $\text{Ir(ppy)}_3$ )、トリス(ベンゾ[h]キノリン)イリジウム( $\text{Ir(bzq)}_3$ )等を用いた検討をおこなっている(なおこれらの金属錯体は一般にオルトメタル化イリジウム錯体と呼ばれている。)
- [0013] 又、前記、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ

(2001年)等においても、各種イリジウム錯体を用いて素子化する試みがされている。

- [0014] 又、高い発光効率を得るために、The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)では、Ikaiらはホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。また、M. E. Thompsonらは、各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーブして用いている。
- [0015] 中心金属をイリジウムの代わりに白金としたオルトメタル化錯体も注目されている。この種の錯体に関しては、配位子に特徴を持たせた例が多数知られている(例えば、特許文献1〜5及び非特許文献1参照。)
- [0016] 何れの場合も発光素子とした場合の発光輝度や発光効率は、その発光する光が燐光に由来することから、従来の素子に比べ大幅に改良されるものであるが、素子の発光寿命については従来の素子よりも低いという問題点があった。
- [0017] また、りん光性の高効率の発光材料としては色純度の良い青色発光材料が求められているにも関わらず、発光波長の短波化が難しく実用に耐えうる性能を十分に達成できていないのが現状である。波長の短波化に関してはこれまで、フェニルピリジンにフッ素原子等の電子吸引基を置換基として導入すること、配位子としてピコリン酸やピラザボール系の配位子を導入することが知られている(例えば、特許文献6〜8及び非特許文献1〜4参照)。しかしこのような置換基効果を利用して発光波長を短波化し青色を出そうとすると、高効率の素子を達成できる一方、オルトメタル化錯体自体の発光寿命は大幅に劣化するため、そのトレードオフの改善が求められていた。

特許文献1:特開2002-332291号公報

特許文献2:特開2002-332292号公報

特許文献3:特開2002-338588号公報

特許文献4:特開2002-226495号公報

特許文献5:特開2002-234894号公報

特許文献6:国際公開第02/15645号パンフレット

特許文献7:特開2003-123982号公報

特許文献8:特開2002-117978号公報

非特許文献1:Inorganic Chemistry, 第41巻、第12号、3055-3066ページ(2002年)

非特許文献2:Applied Physics Letters., 第79巻、2082ページ(2001年)

非特許文献3:Applied Physics Letters., 第83巻、3818ページ(2003年)

非特許文献4:New Journal of Chemistry., 第26巻、1171ページ(2002年)

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0018] 本発明に係る課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、特定の配位子を持つ金属錯体である有機EL素子材料と該素子材料を用いて、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機EL素子、照明装置及び表示装置を提供することである。

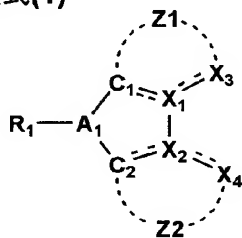
### 課題を解決するための手段

[0019] 本発明の上記目的は下記の構成により達成された。

[0020] (項1)

下記一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式(1)



[0021] [式中、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ 、 $X_4$ は、各々独立に炭素原子または窒素原子を表し、 $C_1$ 、 $C_2$ は炭素原子を表し、 $Z1$ は、 $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に、 $Z2$ は、 $C_2$ 、 $X_2$ 、 $X_4$ と共に、各々芳香族炭化

水素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $A_1$ は窒素原子またはホウ素原子を表し、 $R_1$ は置換基を表す。 $C_1$ と $X_1$ との間の結合、 $C_2$ と $X_2$ との間の結合、 $X_1$ と $X_3$ との間の結合、 $X_2$ と $X_4$ との間の結合は単結合または二重結合を表す。]

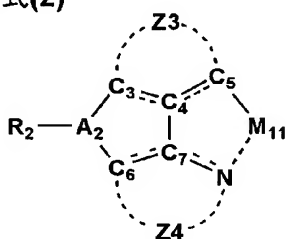
(項2)

前記一般式(1)の $R_1$ は、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることを特徴とする項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

[0022] (項3)

下記一般式(2)で表される部分構造を有する金属錯体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式(2)



[0023] [式中、 $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ 、 $C_6$ 、 $C_7$ は、各々炭素原子を表し、 $Z3$ は、 $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ と共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z4$ は、 $C_6$ 、 $C_7$ 、 $N$ と共に芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $A_2$ は窒素原子またはホウ素原子を表し、 $R_2$ は置換基を表し、 $M_{11}$ は、元素周期表における第8族～第10族の元素を表す。 $C_3$ と $C_4$ との間の結合、 $C_4$ と $C_5$ との間の結合、 $C_6$ と $C_7$ との間の結合、 $C_7$ と $N$ との間の結合は単結合または二重結合を表す。]

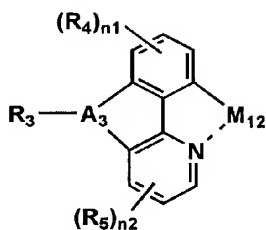
(項4)

前記一般式(2)の $R_2$ は、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることを特徴とする項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

[0024] (項5)

前記金属錯体が、下記一般式(3)またはその互変異性体を部分構造として有する金属錯体であることを特徴とする項3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

## 一般式(3)



[0025] [式中、 $A_3$ は窒素原子またはホウ素原子を表し、 $R_3$ は置換基を表し、 $R_4$ 、 $R_5$ は置換基を表す。 $n1$ 、 $n2$ は、各々0～3の整数を表す。 $M_{12}$ は元素周期表における第8族～第10族の元素を表す。]

## (項6)

前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、イリジウムであることを特徴とする項3～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

## [0026] (項7)

前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、白金であることを特徴とする項3～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

## [0027] (項8)

項1～7のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## [0028] (項9)

構成層として、少なくとも一層の発光層を有し、該発光層が項1～7のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する事を特徴とする項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## [0029] (項10)

構成層として、少なくとも一層の発光層及び少なくとも一層の正孔阻止層を有し、該正孔阻止層が、項1～7のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする項8または9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## [0030] (項11)



項8〜10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。

[0031] (項12)

項8〜10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

### 発明の効果

[0032] 本発明により、特定の配位子を持つ金属錯体である有機EL素子材料と該素子材料を用いて、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機EL素子、照明装置及び表示装置を提供することが出来た。

### 図面の簡単な説明

[0033] [図1]有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

[図2]表示部Aの模式図である。

[図3]画素を構成する駆動回路の等価回路図である。

[図4]パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。

[図5]有機EL素子OLED1-1の封止構造の概略模式図である。

[図6(a)]有機EL素子を具備してなる照明装置の平面模式図である。

[図6(b)]有機EL素子を具備してなる照明装置の断面模式図である。

### 発明を実施するための最良の形態

[0034] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子材料において、請求項1〜7のいずれか1項で規定する構成とすることにより、特定の配位子を持つ金属錯体である有機EL素子材料を得ることが出来た。該有機EL素子材料を用いることにより、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機EL素子を得ることが出来る。更に、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を用いることにより、高輝度で、且つ、高耐久性を示す、請求項11に記載の表示装置、請求項12に記載の照明装置を各々得ることが出来た。

[0035] 以下、本発明に係る各構成要素の詳細について、順次説明する。

[0036] 本発明者等は、上記問題点に鑑み鋭意検討を行った結果、前記一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体、前記一般式(2)で表される部分構造を有する金属錯

体、または、前記一般式(3)で表される部分構造を有する金属錯体のように、特定の配位子を持つ金属錯体を有機EL素子に用いることにより、本発明に記載の効果、即ち、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機EL素子が得られることが判った。

[0037] ここで、本発明に用いられる『特定の配位子を持つ金属錯体』とは、配位子と中心金属から金属錯体が形成される場合に、金属錯体の中心金属と配位子が錯形成される側とは反対側(即ち、配位子と中心金属との間で配位結合が形成される側とは逆側を示す。)に位置する配位子分子のオルト位同士が、窒素原子1個またはホウ素原子1個で連結した分子構造を有することが特徴である。

[0038] 上記のような特徴を有する配位子を持つ金属錯体を本発明の有機EL素子材料として用いることにより、従来の金属錯体を含む有機EL素子材料を用いて作製された有機EL素子の問題点であった短い発光寿命が大幅に改善されることが判った。

[0039] また、前記金属錯体の素子中の含有層としては、発光層及び／または正孔阻止層が好ましく、また、発光層に含有される場合は、前記発光層中の発光ドーパントとして用いられることにより、本発明に記載の効果である、有機EL素子の発光寿命の長寿命化を達成することが出来た。

[0040] 本発明の有機EL素子材料として、前記金属錯体を用いたことにより、素子の長寿命化が達成された理由は、現在、解析中であるが、本発明者等は、金属錯体が本来的に有する平面性が、上記の置換様式を有する配位子の立体障害により、前記平面性が阻害される結果、エキシマーの形成が抑えられることによると推定している。

[0041] また、従来知られている金属錯体はホール輸送性は高いが、電子輸送性が低いために電界をかけた時の発光が、正孔阻止層や電子輸送層側で起こる場合が多く、この点でも素子の寿命を劣化させる要因になっていた。本発明のように窒素原子やホウ素原子を含有した電子輸送性の基を導入することにより、発光層の中心近傍で発光させることが可能となり、寿命の改良効果が得られているものと推定している。尚、発光層、正孔阻止層等の層構成や、発光ドーパント等の層を構成する材料等については、後で詳細に説明する。

[0042] 《金属錯体》

本発明の有機EL素子材料に係る金属錯体について説明する。

[0043] 《一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体》

本発明に係る一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体について説明する。

[0044] 最初に、一般式(1)で表される配位子について説明する。

[0045] 一般式(1)において、 $Z_1$ が $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に、 $Z_2$ が $C_2$ 、 $X_2$ 、 $X_4$ と共に、各々形成する芳香族炭化水素環としては、例えば、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、*o*-テルフェニル環、*m*-テルフェニル環、*p*-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0046] 中でも好ましく用いられるのは、ベンゼン環である。更に、前記芳香族炭化水素環は、後述する、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基を有してもよい。

[0047] 一般式(1)において、 $Z_1$ が $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に、 $Z_2$ が $C_2$ 、 $X_2$ 、 $X_4$ と共に、各々形成する芳香族複素環としては、例えば、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、カルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくともひとつが更に窒素原子で置換されている環等が挙げられる。

[0048] 中でも好ましいのは、ピリジン環である。更に、前記芳香族複素環は、後述する、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基を有してもよい。

[0049] 一般式(1)において、 $R_1$ で表される置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基(例えば、ベンジル基、2-フェネチル基等)、芳香族炭化水素基(例えば、フェニル基、*p*-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル

基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基等)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、フタラジニル基等)、アルコキシル基(例えば、メキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、シアノ基、水酸基、アルケニル基(例えば、ビニル基等)、スチリル基、ハロゲン原子(例えば、塩素原子、臭素原子、沃素原子、フッ素原子等)等が挙げられる。これらの基は、更に置換されていてもよい。

- [0050] 中でも、本発明では、上記 $R_1$ で表される基の少なくともひとつは、上記の芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることが好ましい。
- [0051] 上記一般式(1)で表される配位子と中心金属(金属でもイオンでもよい)との間で配位結合が形成(錯形成ともいう)されて金属錯体が形成される。
- [0052] ここで、前記配位子と中心金属(後述する)との間で配位結合が形成されるのは、前記一般式(1)で表される配位子を構成する原子の中で、 $X_3$ 及び／または $X_4$ との間で配位結合または共有結合が形成されることが好ましい。
- [0053] 《一般式(2)で表される配位子を有する金属錯体》  
本発明に係る一般式(2)で表される部分構造を有する金属錯体について説明する。
- [0054] 一般式(2)において、 $Z$ が $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ と共に形成する芳香族炭化水素環は、前記一般式(1)において、 $Z$ が $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に形成する芳香族炭化水素環と同義である。
- [0055] 一般式(2)において、 $Z$ が $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ と共に形成する芳香族複素環は、前記一般式(1)において、 $Z$ が $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に形成する芳香族複素環と同義である。
- [0056] 一般式(2)において、 $Z$ が $C_4$ 、 $C_6$ 、 $C_7$ 、 $N$ と共に形成する芳香族複素環は、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、カルボリン環

を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくともひとつが更に窒素原子で置換されている環等が挙げられる。更に、前記芳香族複素環は、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基を有してもよい。

[0057] 一般式(2)において、 $R_2$ で表される置換基は、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基と同義である。

[0058] 一般式(2)において、 $M_{11}$ で表される、元素周期表における第8族～第10族の元素としては、白金(Pt)、イリジウム(Ir)等が好ましい。また、一般式(2)において、 $M_{11}$ は、金属でもよく、イオンでもよい。

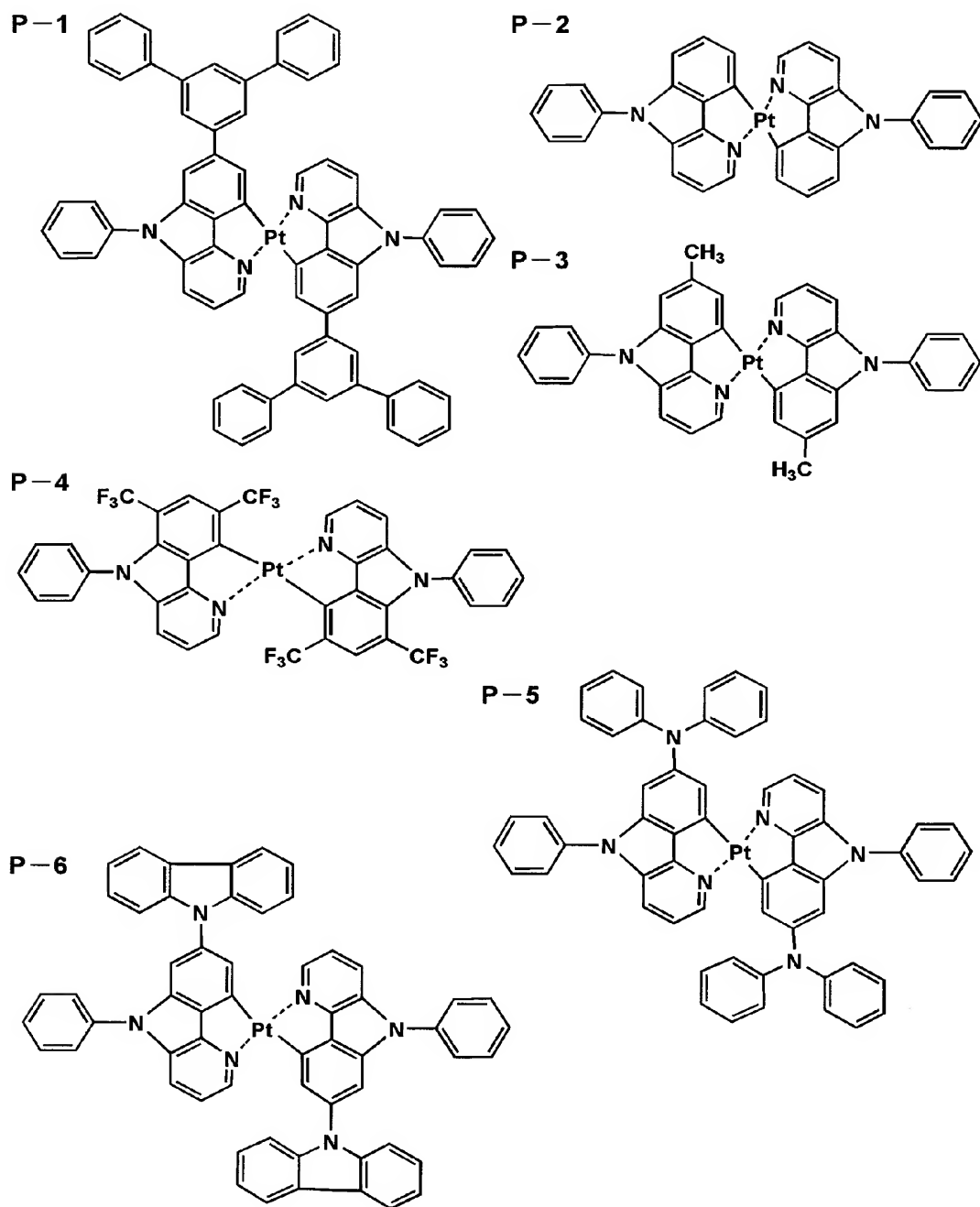
[0059] 《一般式(3)またはその互変異性体を部分構造として有する金属錯体》  
本発明に係る一般式(3)またはその互変異性体を部分構造として有する金属錯体について説明する。

[0060] 一般式(3)において、 $R_3$ で表される置換基は、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基と同義である。

[0061] 一般式(3)において、 $R_4$ 、 $R_5$ で各々表される置換基は、前記一般式(1)において $R_1$ で表される置換基と同義である。

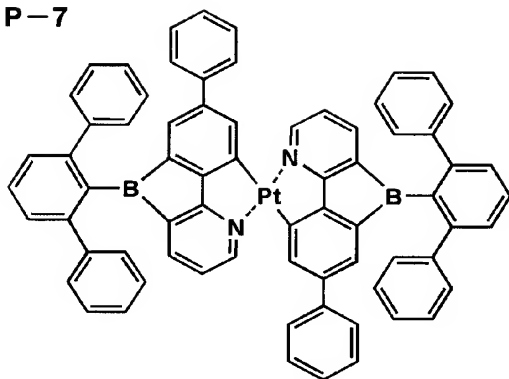
[0062] 一般式(3)において、 $M_{12}$ で表される、元素周期表における第8族～第10族の元素としては、白金(Pt)、イリジウム(Ir)等が好ましい。また、一般式(3)において、 $M_{12}$ は、金属でもよく、イオンでもよい。

[0063] 以下に、本発明の有機EL素子材料として用いられる金属錯体化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

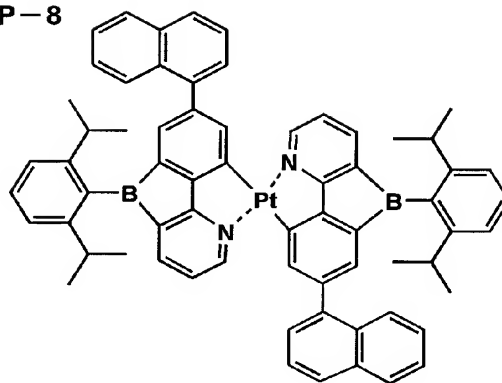


[0064]

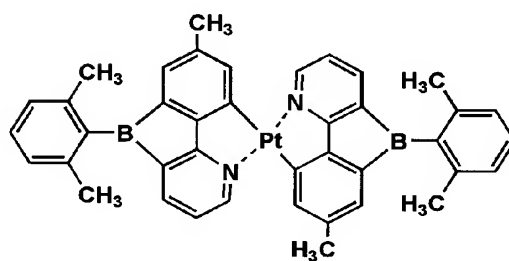
P-7



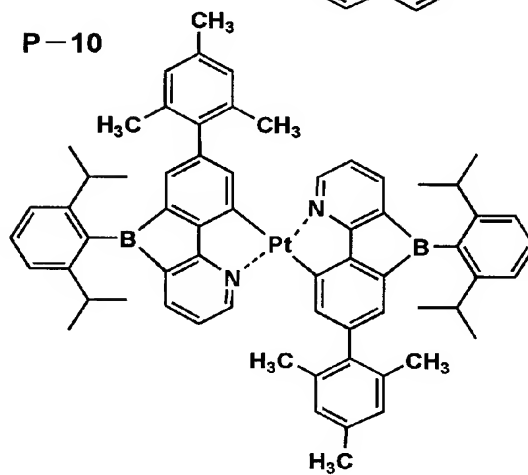
P-8



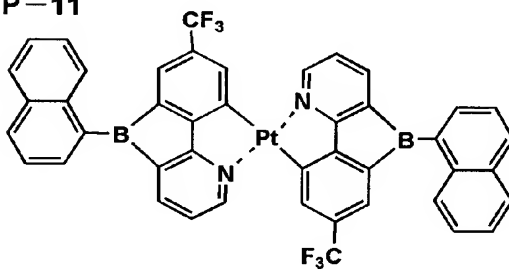
P-9



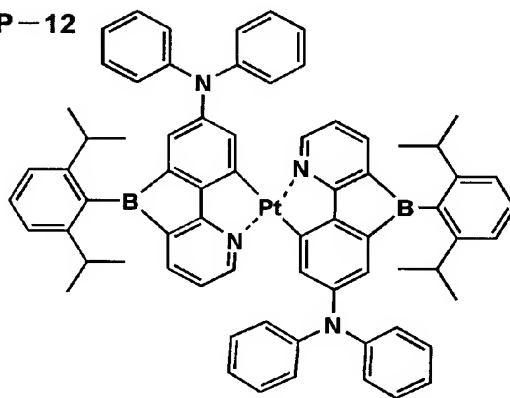
P-10



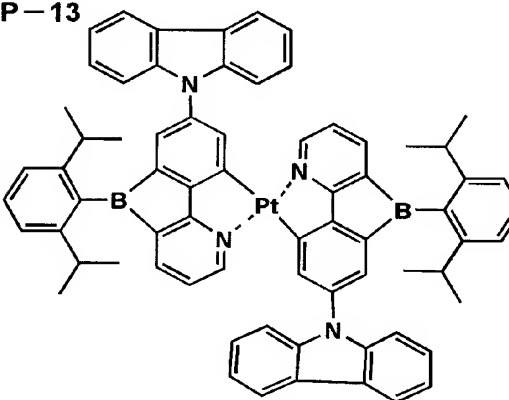
P-11



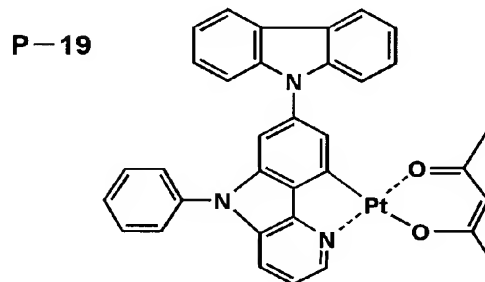
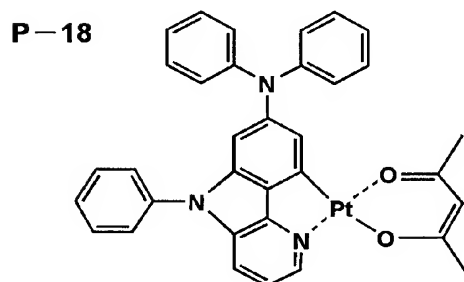
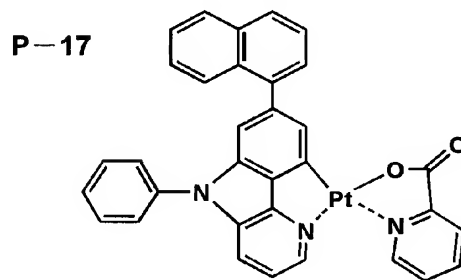
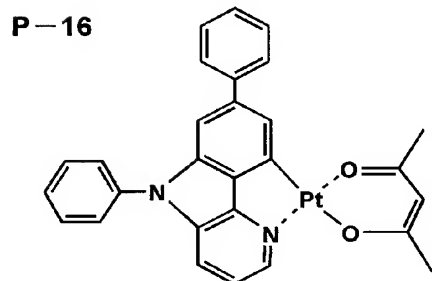
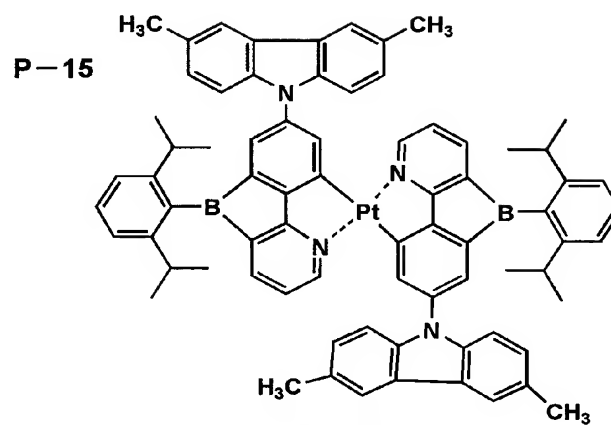
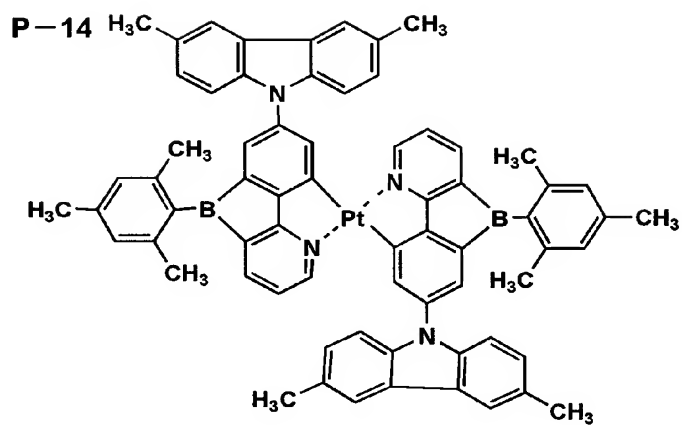
P-12



P-13



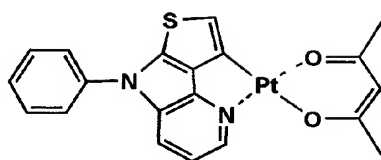
[0065]



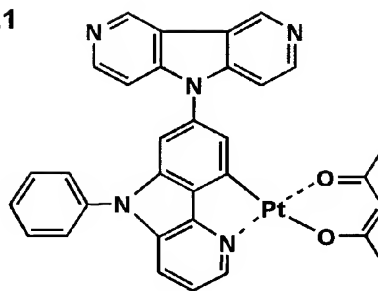


[0066]

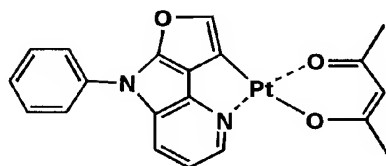
P-20



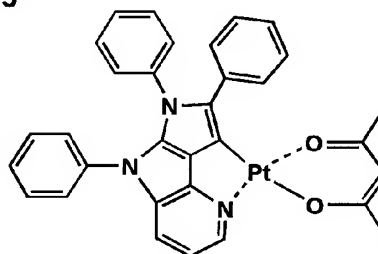
P-21



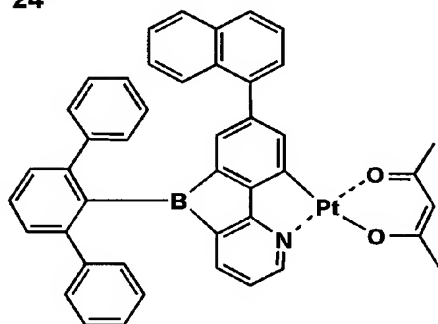
P-22



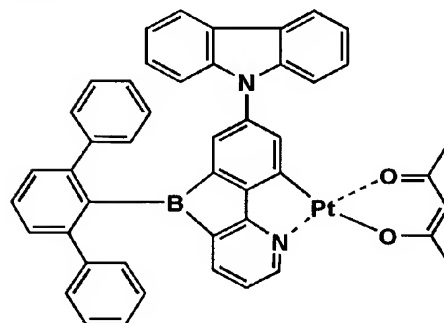
P-23



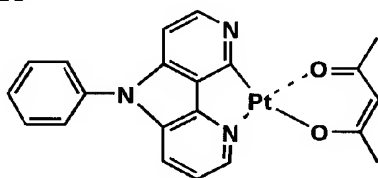
P-24



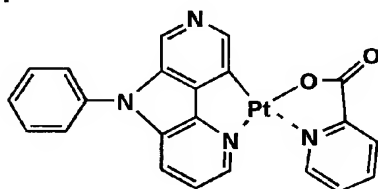
P-25



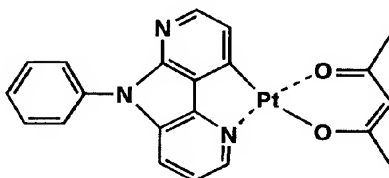
P-26



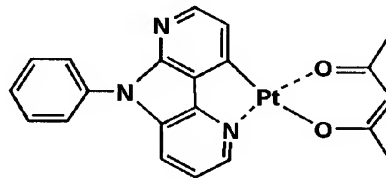
P-27



P-28

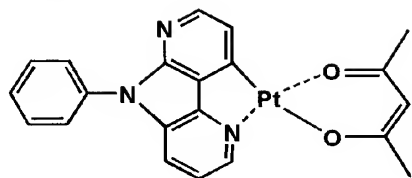


P-29

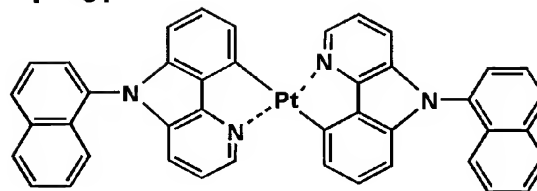


[0067]

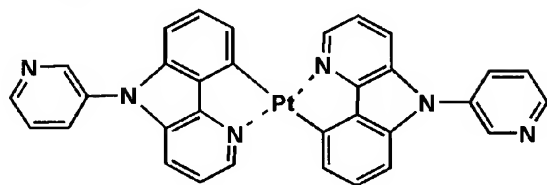
P-30



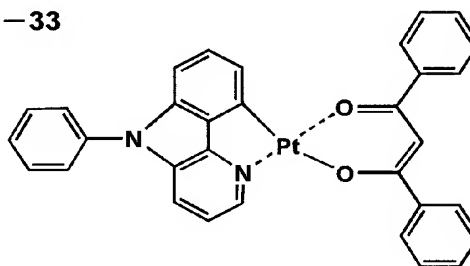
P-31



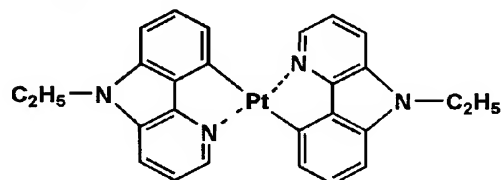
P-32



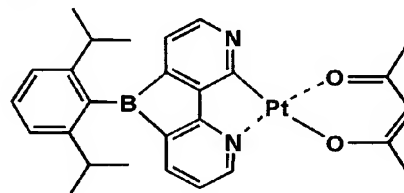
P-33



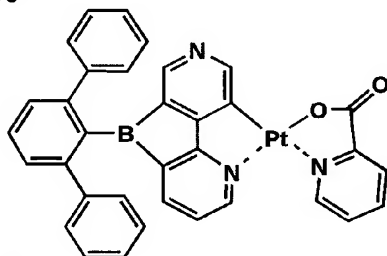
P-34



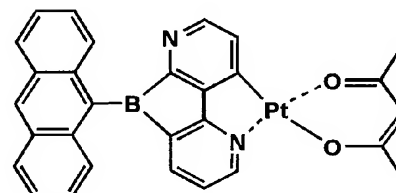
P-35



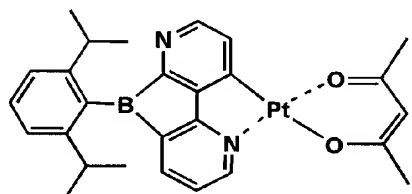
P-36



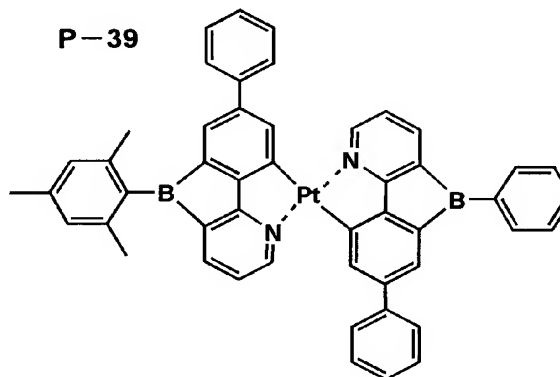
P-37



P-38

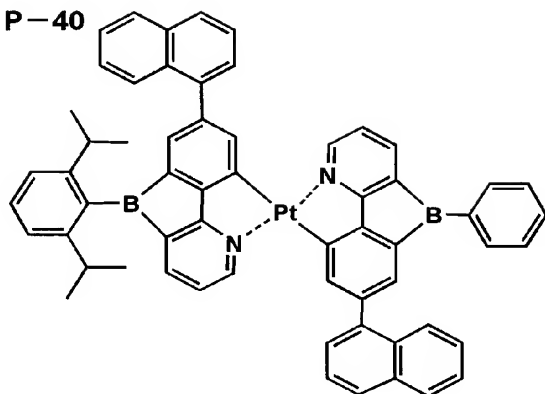


P-39

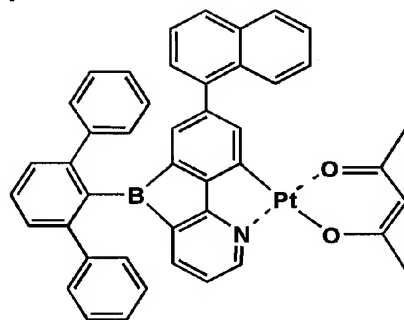


[0068]

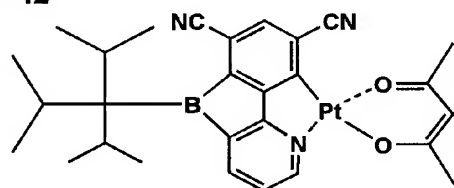
P-40



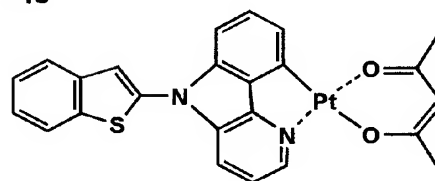
P-41



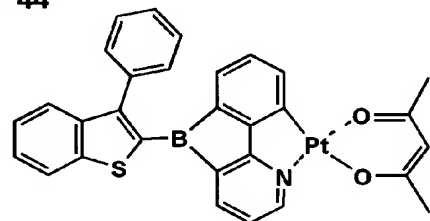
P-42



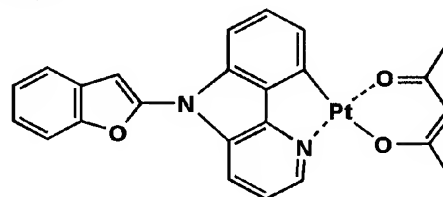
P-43



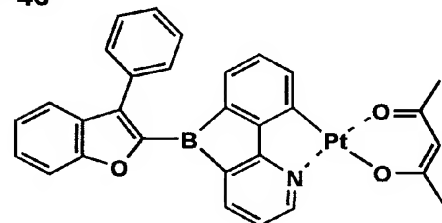
P-44



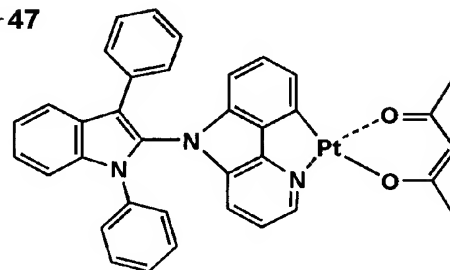
P-45



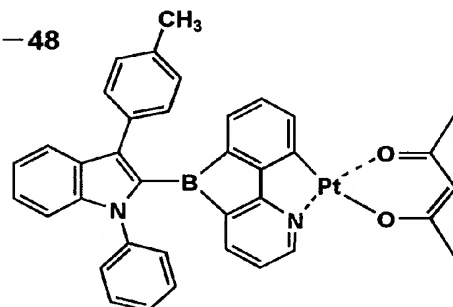
P-46



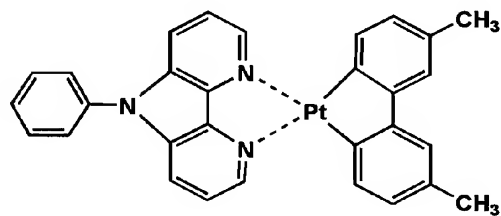
P-47



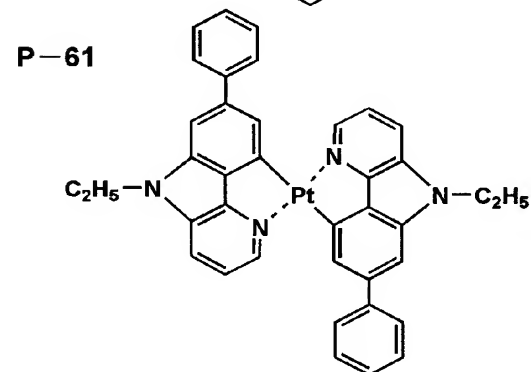
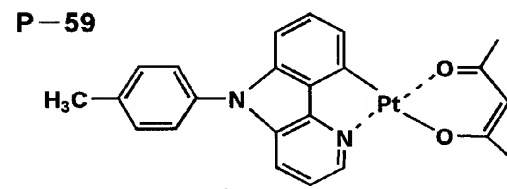
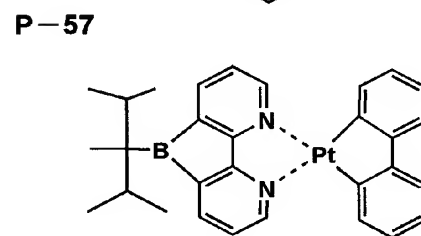
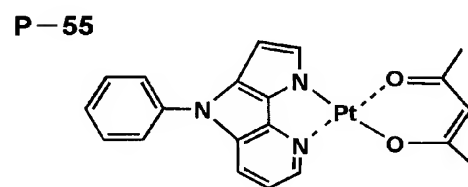
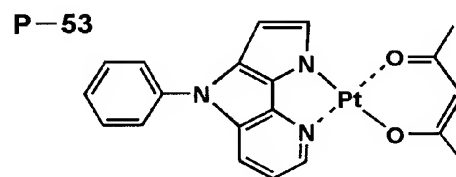
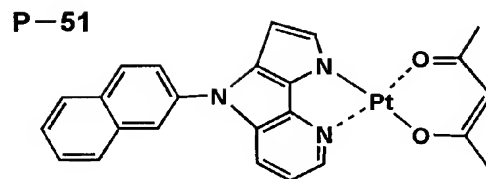
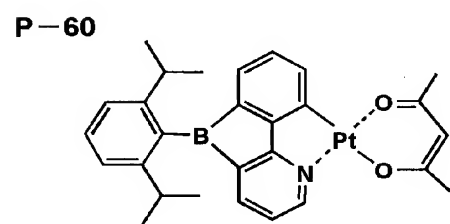
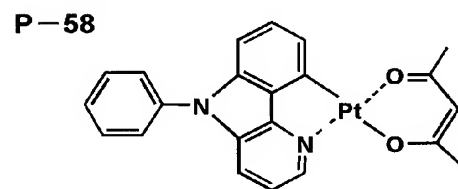
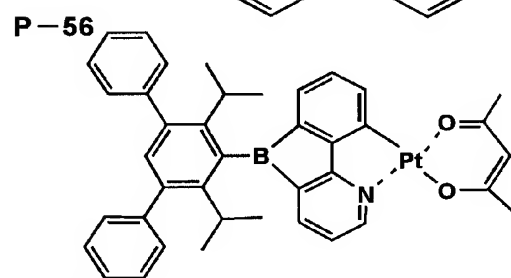
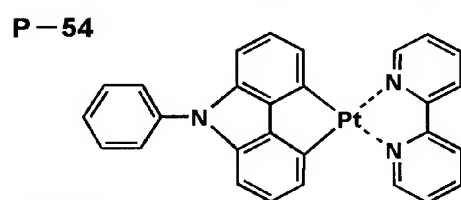
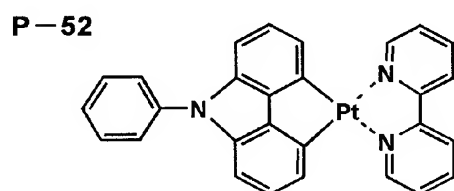
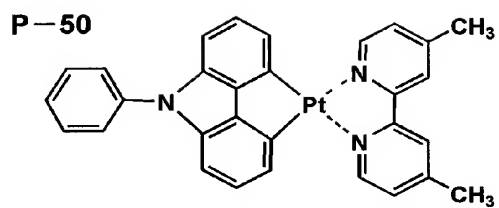
P-48



P-49

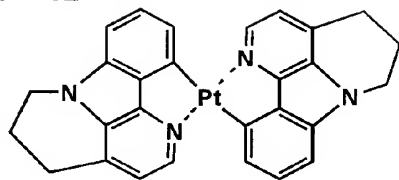


[0069]

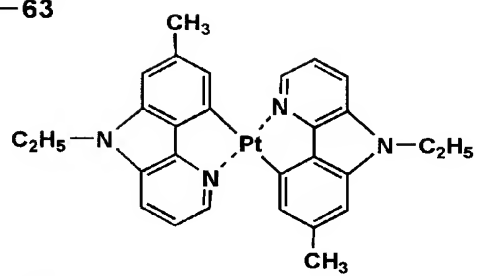


[0070]

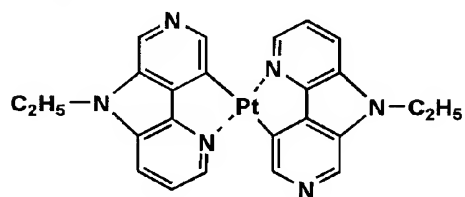
P-62



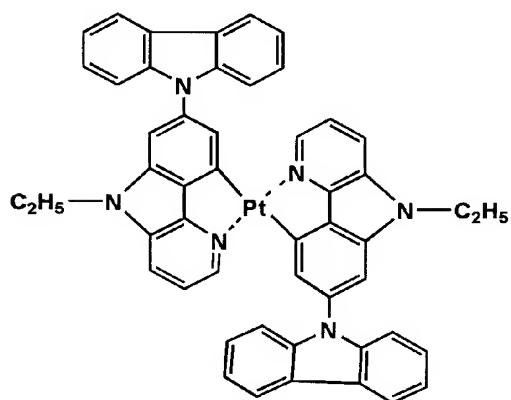
P-63



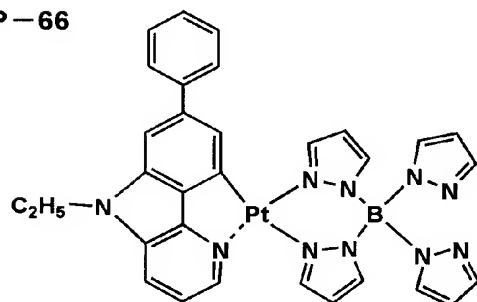
P-64



P-65

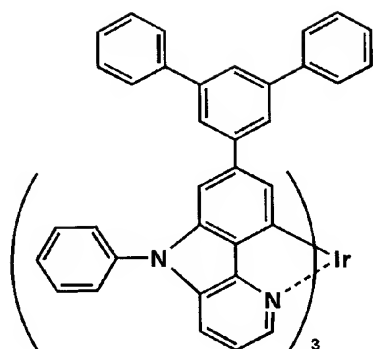


P-66

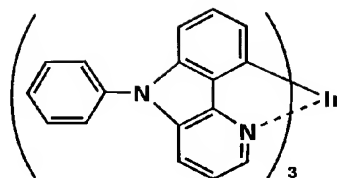


[0071]

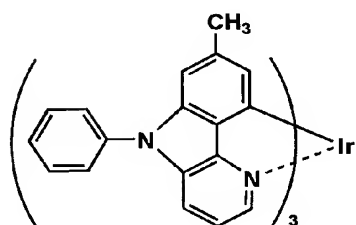
I-1



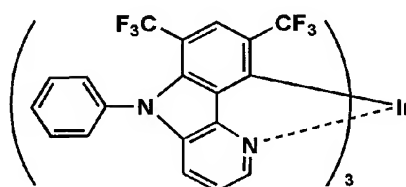
I-2



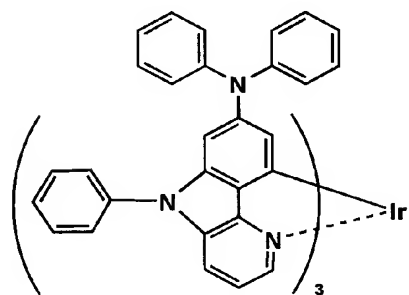
I-3



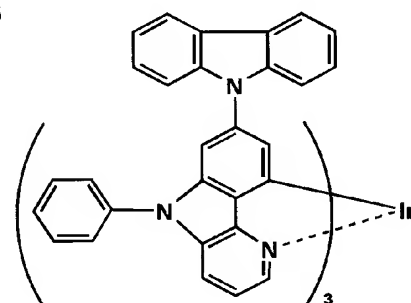
I-4



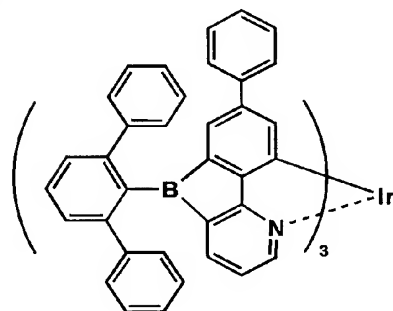
I-5



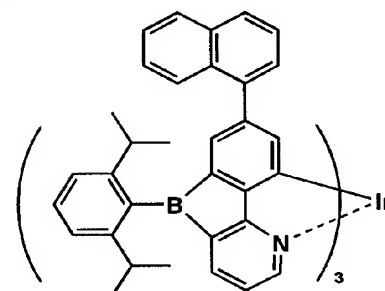
I-6



I-7

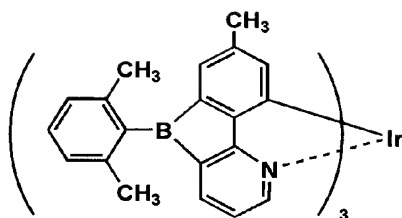


I-8

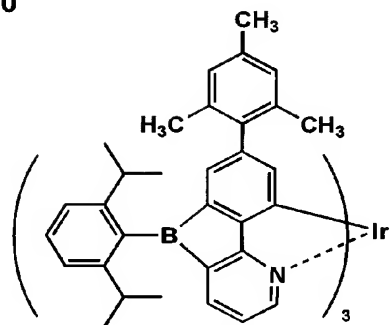


[0072]

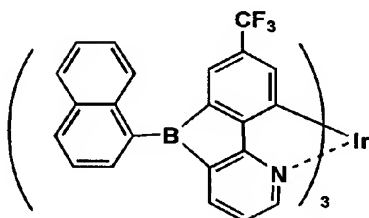
I-9



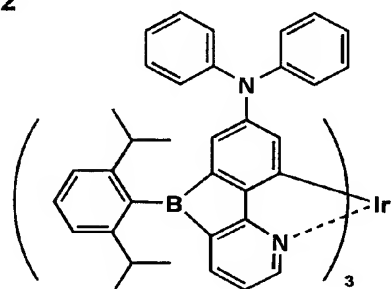
I-10



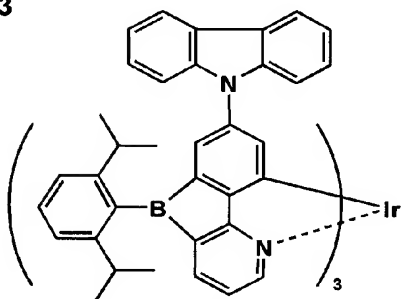
I-11



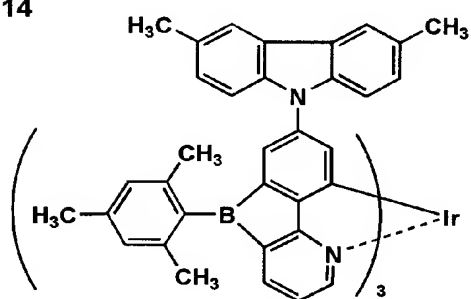
I-12



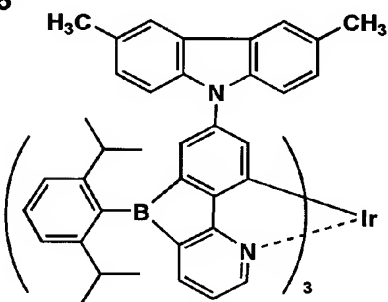
I-13



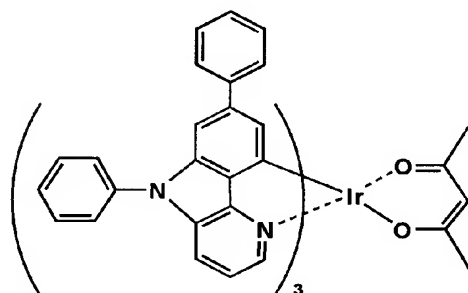
I-14



I-15

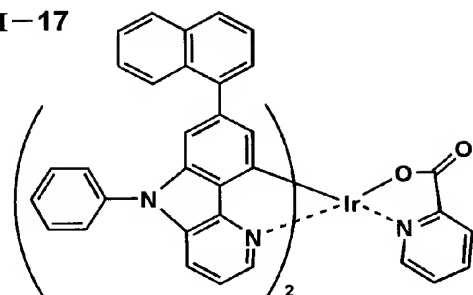


I-16

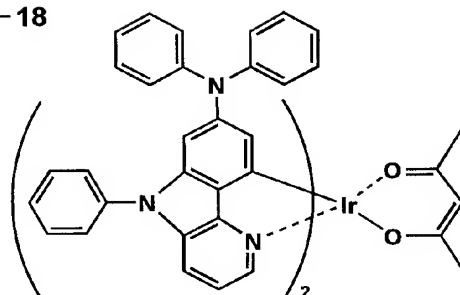


[0073]

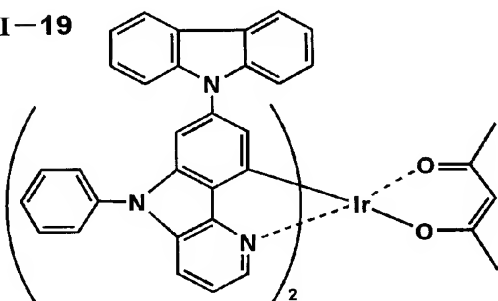
I-17



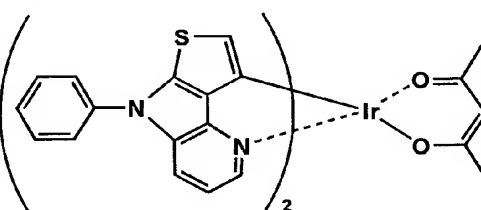
I-18



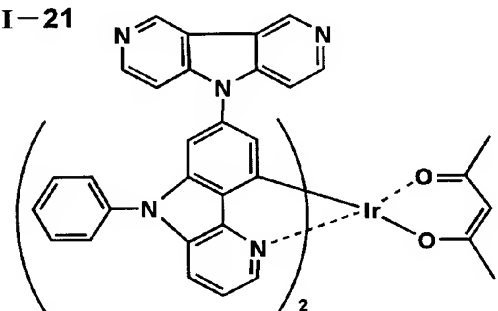
I-19



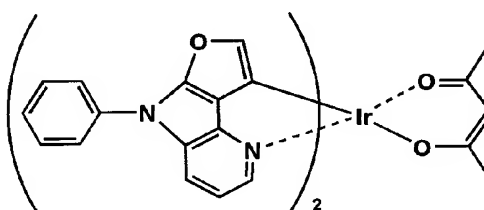
I-20



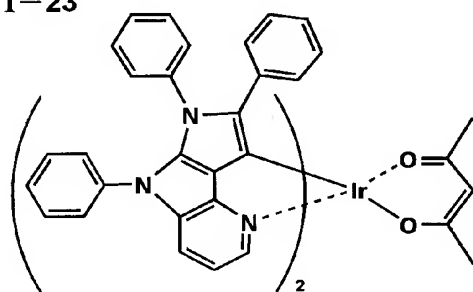
I-21



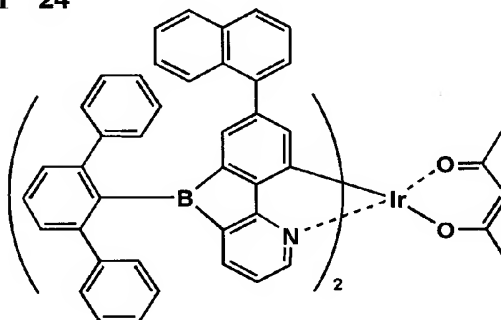
I-22



I-23



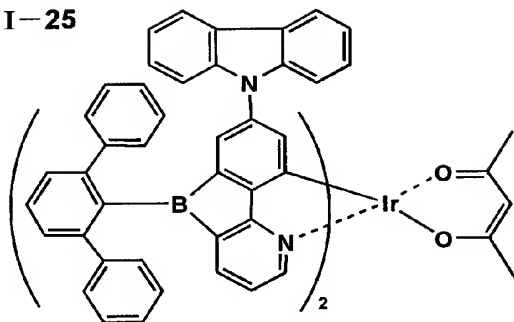
I-24



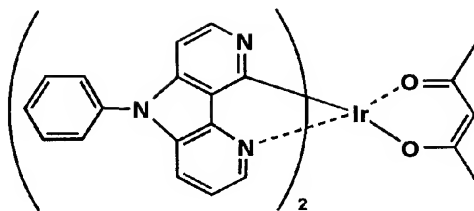


[0074]

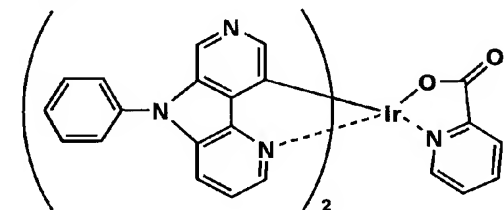
I-25



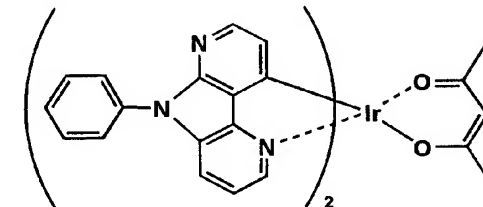
I-27



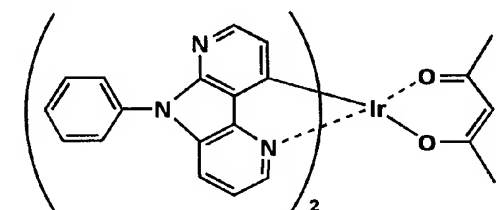
I-28



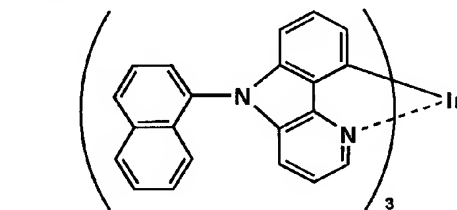
I-29



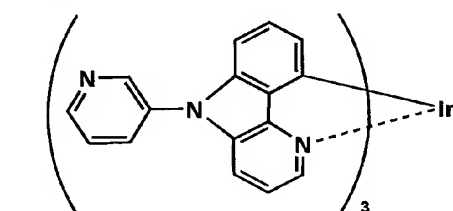
I-30



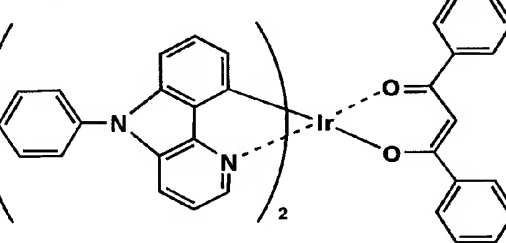
I-31



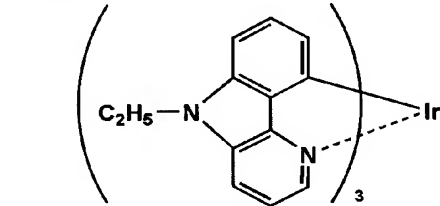
I-32



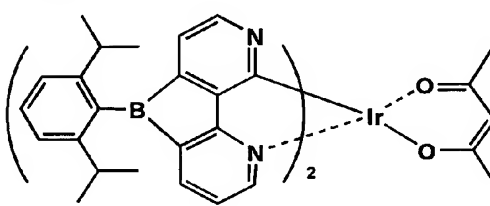
I-33



I-34

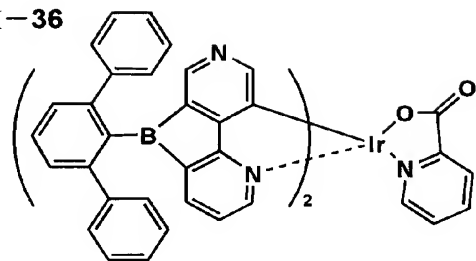


I-35

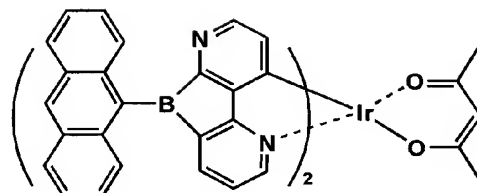


[0075]

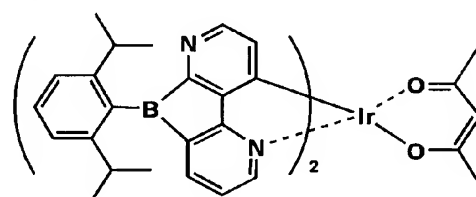
I-36



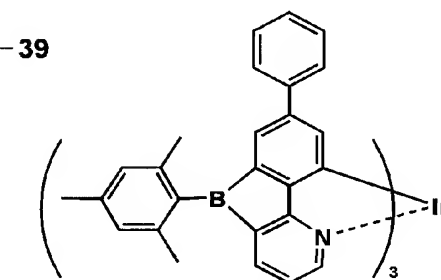
I-37



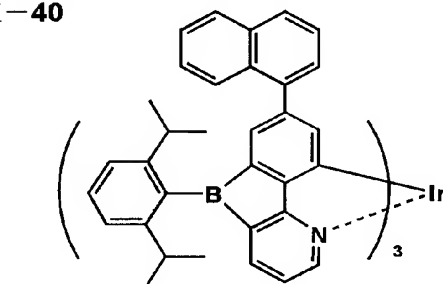
I-38



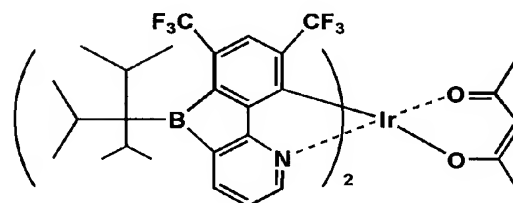
I-39



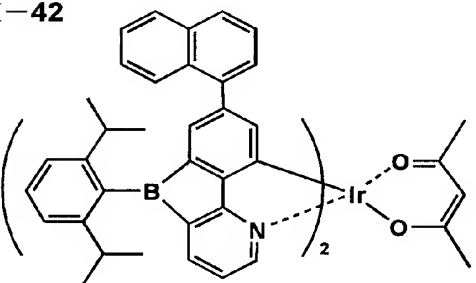
I-40



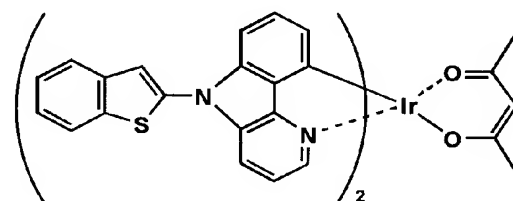
I-41



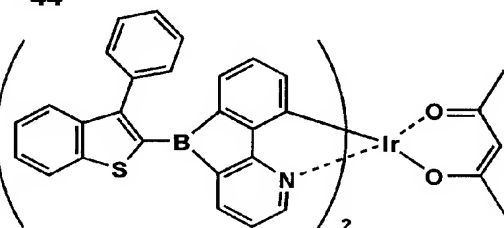
I-42



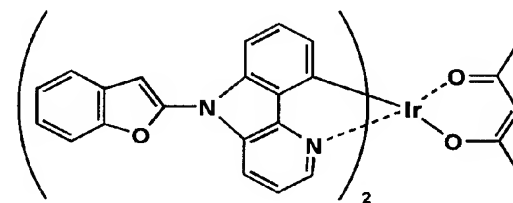
I-43



I-44

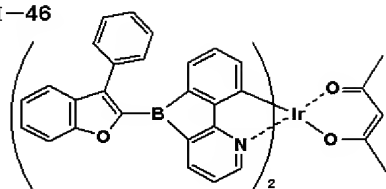


I-45

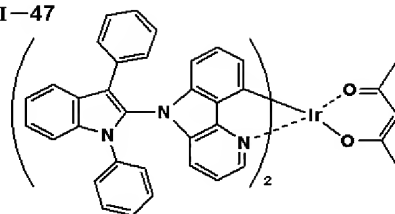


[0076]

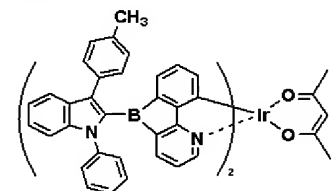
I-46



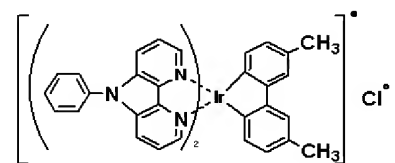
I-47



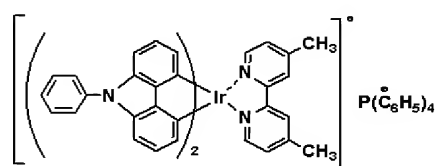
I-48



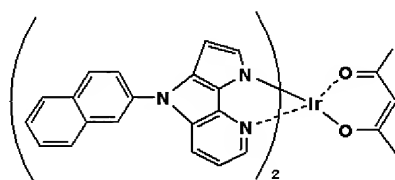
I-49



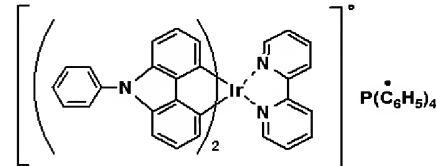
I-50



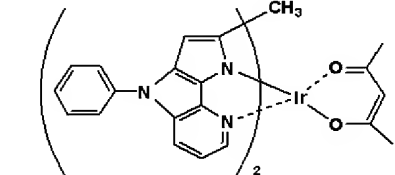
I-51



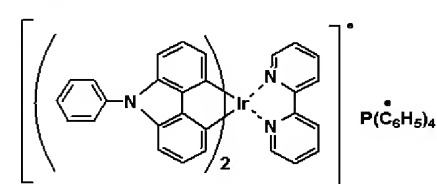
I-52



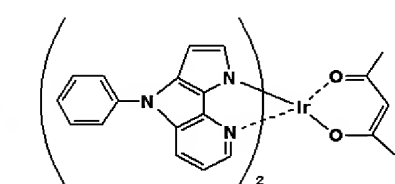
I-53



I-54

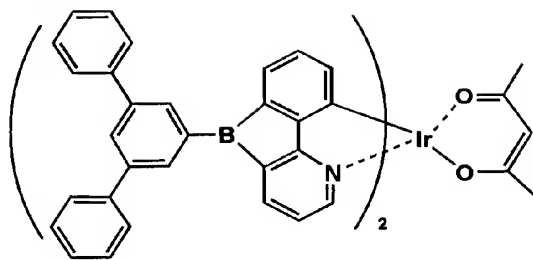


I-55

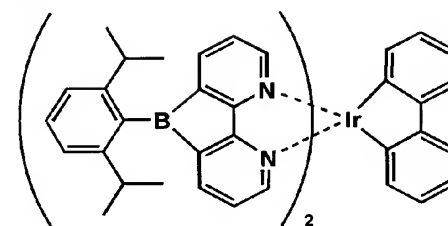


[0077]

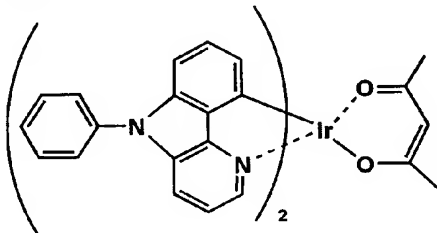
I-56



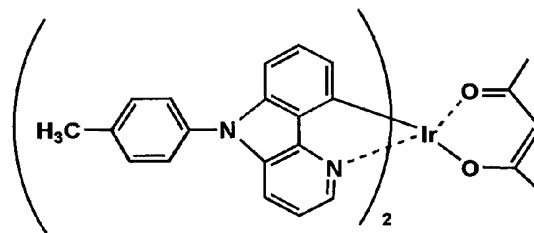
I-57



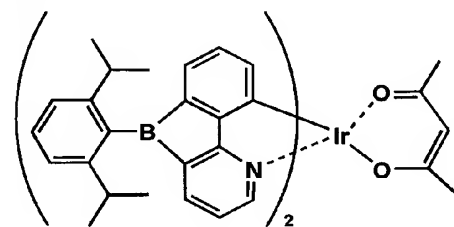
I-58



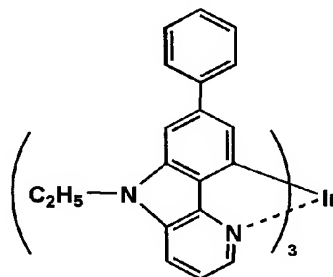
I-59



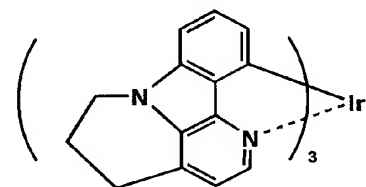
I-60



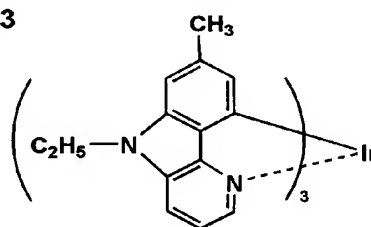
I-61



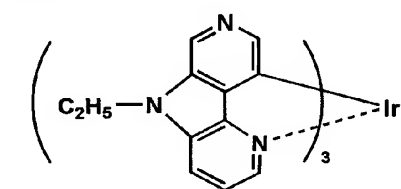
I-62



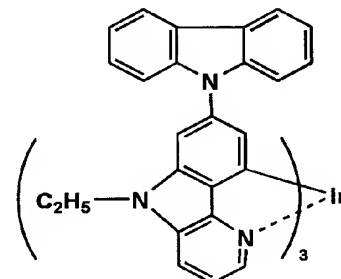
I-63



I-64

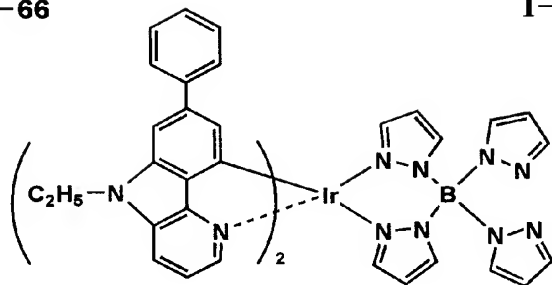


I-65

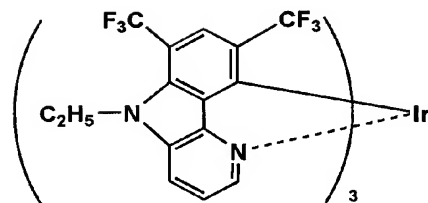


[0078]

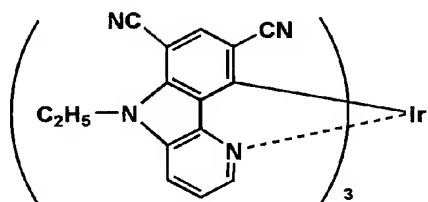
I-66



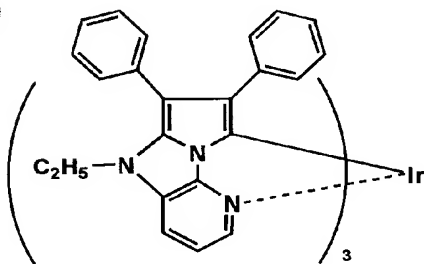
I-67



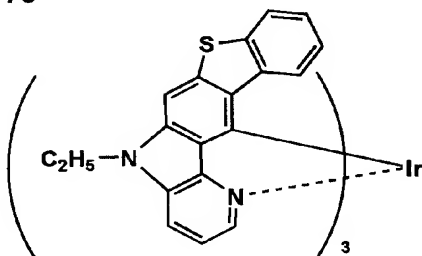
I-68



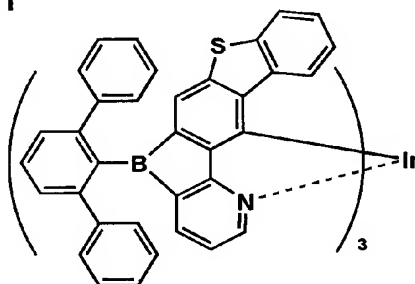
I-69



I-70



I-71



[0079] 本発明の有機EL素子材料に係る金属錯体は、例えばOrganic Letter誌、vol3、No. 16、p2579～2581(2001)、Inorganic Chemistry, 第30巻、第8号、1685～1687ページ(1991年)、J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ(2001年)、Inorganic Chemistry, 第40巻、第7号、1704～1711ページ(2001年)、Inorganic Chemistry, 第41巻、第12号、3055～3066ページ(2002年)、New Journal of Chemistry., 第26巻、1171ページ(2002年)、Journal of the Chemical Society Perkin Transactions 1, 11, 1505～1510ページ(1999年)、さらにこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

[0080] 《金属錯体を含む有機EL素子材料の有機EL素子への適用》

本発明の有機EL素子材料を用いて、有機EL素子を作製する場合、有機EL素子の構成層(詳細は後述する)の中で、発光層または正孔阻止層に用いることが好ましい。また、発光層中では上記のように、発光ドーパントとして好ましく用いられる。

[0081] (発光ホストと発光ドーパント)

発光層中の主成分であるホスト化合物である発光ホストに対する発光ドーパントとの混合比は好ましくは質量で0.1質量%〜30質量%未満の範囲に調整することである。

[0082] ただし、発光ドーパントは複数種の化合物を混合して用いても良く、混合する相手は構造を異にする、その他の金属錯体やその他の構造を有するリン光性ドーパントや蛍光性ドーパントでもよい。

[0083] ここで、発光ドーパントとして用いられる金属錯体と併用しても良いドーパント(リン光性ドーパント、蛍光性ドーパント等)について述べる。

[0084] 発光ドーパントは、大きくわけて、蛍光を発光する蛍光性ドーパントとリン光を発光するリン光性ドーパントの2種類がある。

[0085] 前者(蛍光性ドーパント)の代表例としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフエン系色素、又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

[0086] 後者(リン光性ドーパント)の代表例としては、好ましくは元素の周期表で8属、9属、10属の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

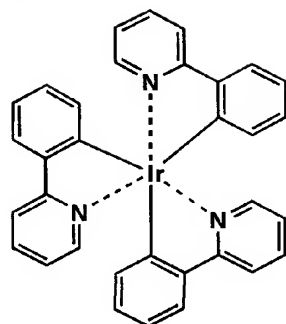
[0087] 具体的には以下の特許公報に記載されている化合物である。

[0088] 国際公開第00/70655号パンフレット、特開2002-280178号公報、特開2001-181616号公報、特開2002-280179号公報、特開2001-181617号公報、特開2002-280180号公報、特開2001-247859号公報、特開2002-299060号公報、特開2001-313178号公報、特開2002-302671号公報、特開2001-345183号公報、特開2002-324679号公報、国際公開第02/15645号パンフレット、特開2002-332291号公報、特開2002-50484号公報、特開2002-332292号

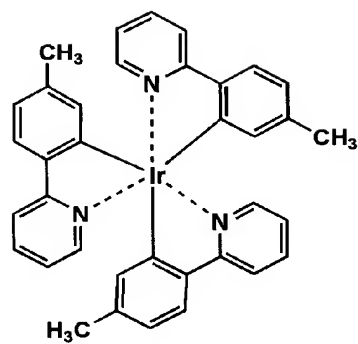
公報、特開2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、特開2002-338588号公報、特開2002-170684号公報、特開2002-352960号公報、国際公開第01/93642号パンフレット、特開2002-50483号公報、特開2002-100476号公報、特開2002-173674号公報、特開2002-359082号公報、特開2002-175884号公報、特開2002-363552号公報、特開2002-184582号公報、特開2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、特開2002-226495号公報、特開2002-234894号公報、特開2002-235076号公報、特開2002-241751号公報、特開2001-319779号公報、特開2001-319780号公報、特開2002-62824号公報、特開2002-100474号公報、特開2002-203679号公報、特開2002-343572号公報、特開2002-203678号公報等。

[0089] その具体例の一部を下記に示す。

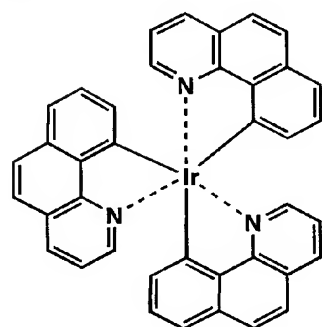
Ir-1



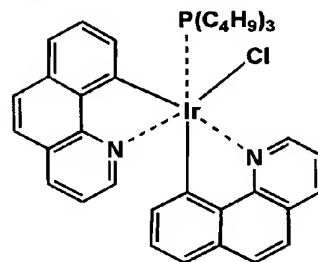
Ir-2



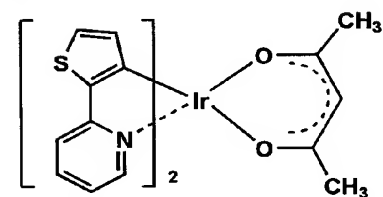
Ir-3



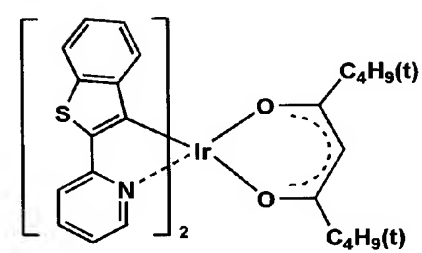
Ir-4



Ir-5



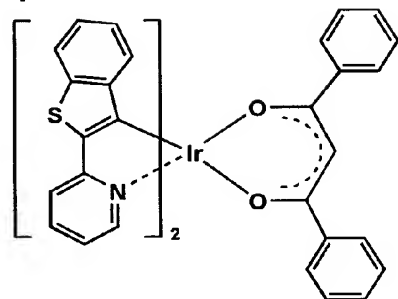
Ir-6



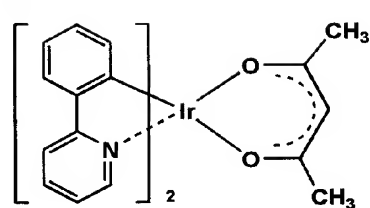


[0090]

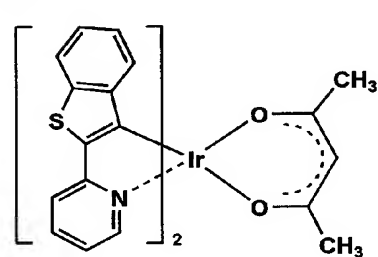
Ir-7



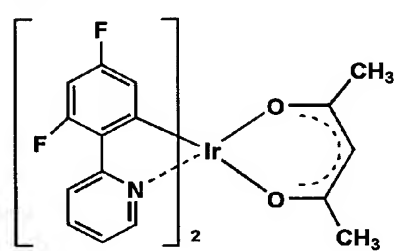
Ir-8



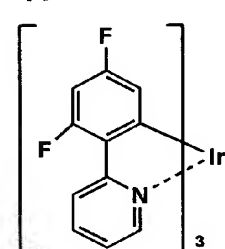
Ir-9



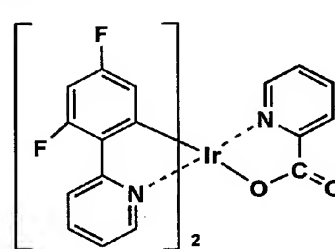
Ir-10



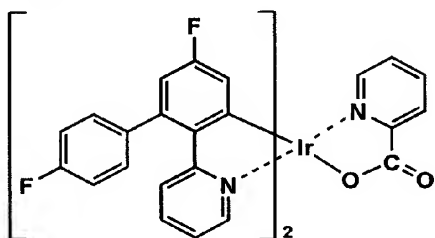
Ir-11



Ir-12

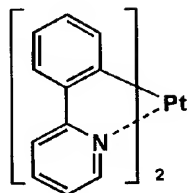


Ir-13

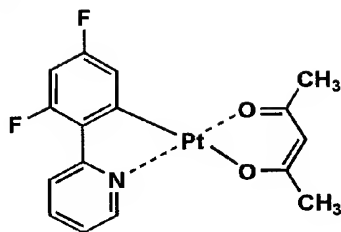


[0091]

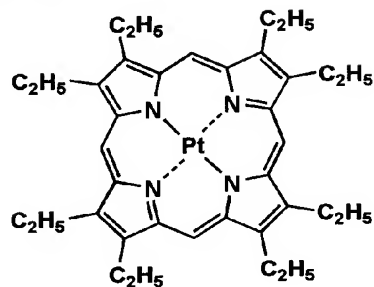
Pt-1



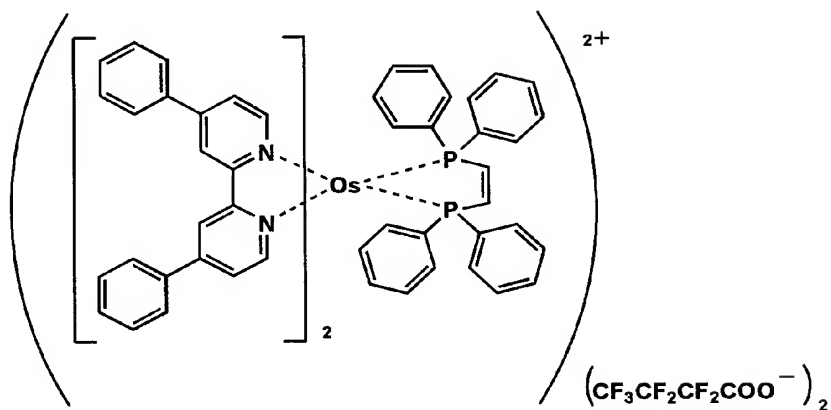
Pt-2



Pt-3



A-1



[0092] (発光ホスト)

発光ホスト(単にホストともいう)とは、2種以上の化合物で構成される発光層中にて混合比(質量)の最も多い化合物のことを意味し、それ以外の化合物については「ドープアント化合物(単に、ドープアントともいう)」という。例えば、発光層を化合物A、化合物Bという2種で構成し、その混合比がA:B=10:90であれば化合物Aがドープアント化合物であり、化合物Bがホスト化合物である。更に、発光層を化合物A、化合物B、化合物Cの3種から構成し、その混合比がA:B:C=5:10:85であれば、化合物A、

化合物Bがドーパント化合物であり、化合物Cがホスト化合物である。

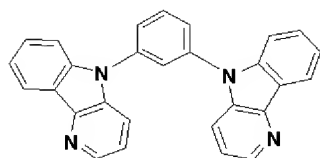
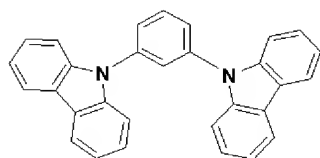
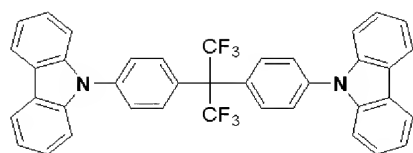
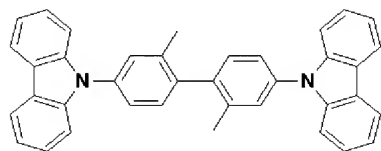
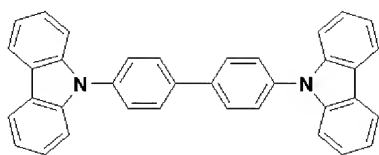
[0093] 本発明に用いられる発光ホストとしては、併用される発光ドーパントのリン光0-0バンドよりも短波長なそれをもつ化合物が好ましく、発光ドーパントにそのリン光0-0バンドが480nm以下である青色の発光成分を含む化合物を用いる場合には、発光ホストとしてはリン光0-0バンドが450nm以下であることが好ましい。

[0094] 本発明の発光ホストとしては、構造的には特に制限はないが、代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族ボラン誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有し、かつ前記0-0バンドが450nm以下の化合物が好ましい化合物として挙げられる。

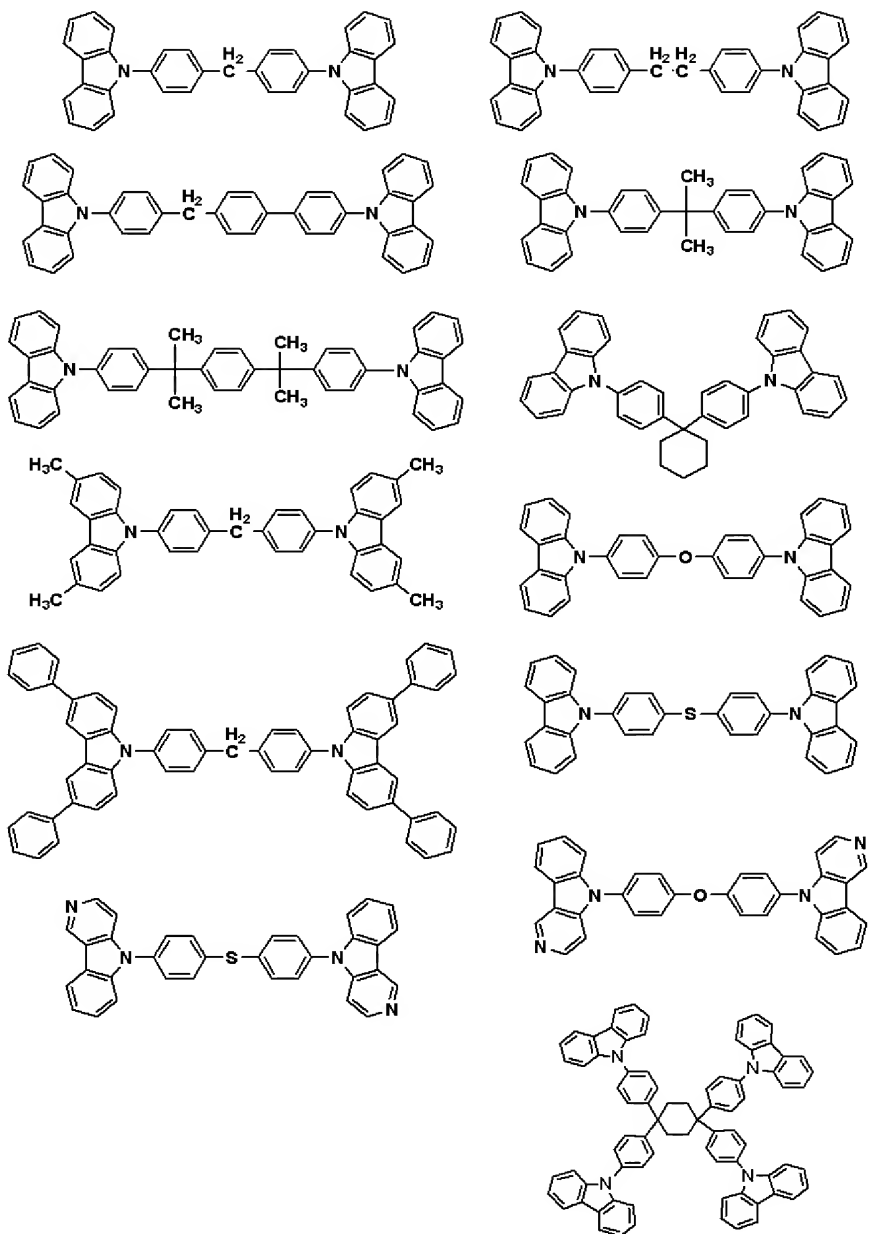
[0095] また、本発明の発光ホストは低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物(蒸着重合性発光ホスト)でもいい。

[0096] 発光ホストとしては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T<sub>g</sub>(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

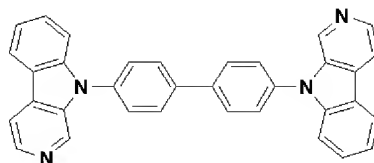
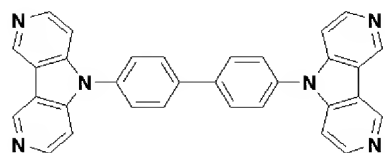
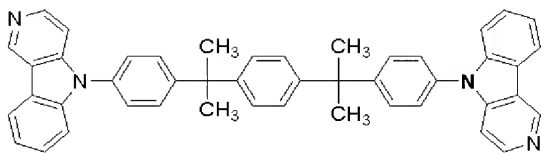
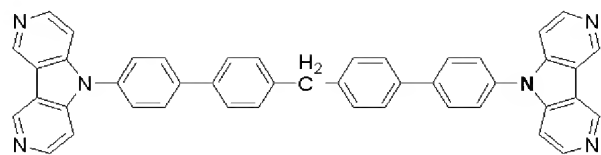
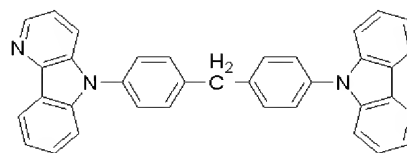
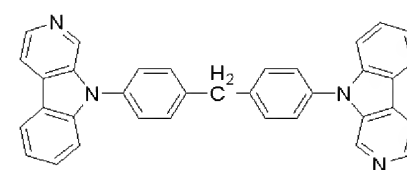
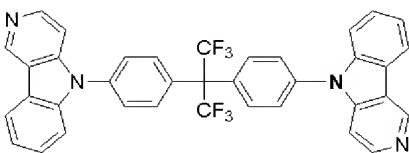
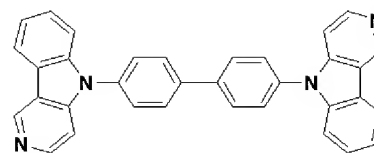
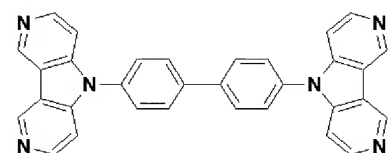
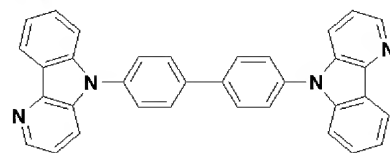
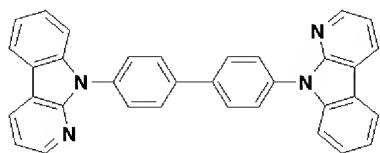
[0097] 発光ホストの具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が好適である。例えば、特開2001-257076号公報、特開2002-308855号公報、特開2001-313179号公報、特開2002-319491号公報、特開2001-357977号公報、特開2002-334786号公報、特開2002-8860号公報、特開2002-334787号公報、特開2002-15871号公報、特開2002-334788号公報、特開2002-43056号公報、特開2002-334789号公報、特開2002-75645号公報、特開2002-338579号公報、特開2002-105445号公報、特開2002-343568号公報、特開2002-141173号公報、特開2002-352957号公報、特開2002-203683号公報、特開2002-363227号公報、特開2002-231453号公報、特開2003-3165号公報、特開2002-234888号公報、特開2003-27048号公報、特開2002-255934号公報、特開2002-260861号公報、特開2002-280183号公報、特開2002-299060号公報、特開2002-302516号公報、特開2002-305083号公報、特開2002-305084号公報、特開2002-308837号公報等。具体的な発光ホストの例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。



[0098]



[0099]

**AZ1**

[0100] 次に、代表的な有機EL素子の構成について述べる。

[0101] 《有機EL素子の構成層》

本発明の有機EL素子の構成層について説明する。

[0102] 本発明の有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれ

らに限定されない。(i)陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極(ii)陽極／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極(iii)陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極(iv)陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極(v)陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極(vi)陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極(vii)陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

《阻止層(電子阻止層、正孔阻止層)》

本発明に係る阻止層(例えば、電子阻止層、正孔阻止層)について説明する。

[0103] 本発明においては、正孔阻止層、電子阻止層等に、本発明の有機EL素子材料を用いることが好ましく、特に好ましくは正孔阻止層に用いることである。

[0104] 本発明の有機EL素子材料を正孔阻止層、電子阻止層に含有させる場合、請求項1～17のいずれか1項に記載されている、本発明に係る金属錯体を正孔阻止層や電子阻止層等の層構成成分として100質量%の状態でも含有させてもよいし、他の有機化合物(例えば、本発明の有機EL素子の構成層に用いられる化合物等)等と混合してもよい。

[0105] 本発明に係る阻止層の膜厚としては好ましくは3nm～100nmであり、更に好ましくは5nm～30nmである。

[0106] 《正孔阻止層》

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0107] 正孔阻止層としては、例えば特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ディー・エス社発行)」の237頁等に記載の正孔阻止(ホールブロック)層等を本発明に係る正孔阻止層として適用可能である。また、後述する電子輸送層の構成を必要に応じて、本発

明に係る正孔阻止層として用いることが出来る。

[0108] 《電子阻止層》

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることが出来る。

[0109] また、本発明においては、発光層に隣接する隣接層、即ち、正孔阻止層、電子阻止層に、上記の本発明の有機EL素子材料を用いることが好ましく、特に正孔阻止層に用いることが好ましい。

[0110] 《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料を含み、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

[0111] 正孔輸送材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0112] 正孔輸送材料は、正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0113] 正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0114] 芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル; N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3



ーメチルフェニル)−[1, 1′-ビフェニル]−4, 4′-ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-  
 p-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘ  
 キサン; N, N, N′, N′-テトラ-p-トリル-4, 4′-ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-  
 ジ-p-トリルアミノフェニル)−4-フェニルシクロヘキササン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-  
 メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N  
 , N′-ジフェニル-N, N′-ジ(4-メトキシフェニル)−4, 4′-ジアミノビフェニル; N,  
 N, N′, N′-テトラフェニル-4, 4′-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4′-ビス(ジフェ  
 ニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン; 4-(ジ-p-トリルアミノ  
 )−4′-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2  
 -ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4′-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼ  
 ン; N-フェニルカルバゾール、さらには、米国特許第5, 061, 569号明細書に記載  
 されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば4, 4′-ビス[N-(1-  
 ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記  
 載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4′, 4  
 ′′-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDAT  
 A)等が挙げられる。

[0115] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖と  
 した高分子材料を用いることもできる。

[0116] また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使  
 用することができる。また、正孔輸送材料は、高T<sub>g</sub>であることが好ましい。

[0117] この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キ  
 ャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成す  
 ることができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm〜50  
 00nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一  
 層構造であってもよい。

[0118] 《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入  
 層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は、単層もしくは複数層を設

けることができる。

[0119] 従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、下記の材料が知られている。

[0120] さらに、電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

[0121] この電子輸送層に用いられる材料(以下、電子輸送材料という)の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキンド誘導体、ナフタレンペリレンなどの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

[0122] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0123] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)、トリス(5, 7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5, 7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

- [0124] この電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5〜5000 nm程度である。この電子輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。
- [0125] 次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層について説明する。
- [0126] 《注入層》：電子注入層、正孔注入層
- 注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。
- [0127] 注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123〜166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。
- [0128] 陽極バッファ層(正孔注入層)は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。
- [0129] 陰極バッファ層(電子注入層)は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的には、ストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。
- [0130] 上記バッファ層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm〜100nmの範囲が好ましい。

[0131] この注入層は、上記材料を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。注入層の膜厚については特に制限はないが、通常は5〜5000nm程度である。この注入層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

[0132] 《陽極》

本発明の有機EL素子に係る陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO( $\text{In}_2\text{O}_3$ - $\text{ZnO}$ )等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100  $\mu\text{m}$ 以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10〜1000nm、好ましくは10〜200nmの範囲で選ばれる。

[0133] 《陰極》

一方、本発明に係る陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )混合物

、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega$ ／□以下が好ましく、膜厚は通常10nm～1000nm、好ましくは50nm～200nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

[0134] 《基体(基板、基材、支持体等ともいう)》

本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

[0135] 樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。

[0136] 樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、水蒸気透過率が $0.01\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}\cdot\text{atm}$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0137] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%)＝有機EL素子外部に発光した光子数／有機EL素子に流した電子数 $\times 100$ である。

[0138] また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用してもよい。

[0139] 照明用途で用いる場合には、発光ムラを低減させるために粗面加工したフィルム(アンチグレアフィルム等)を併用することもできる。

[0140] 多色表示装置として用いる場合は少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。

[0141] 《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

[0142] まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、 $1\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\text{nm}$ ～ $200\text{nm}$ の膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

[0143] この有機化合物を含有する薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピンコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピンコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度 $50^{\circ}\text{C}$ ～ $450^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-6}\text{Pa}$ ～ $10^{-2}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\text{nm}$ ～ $50\text{nm}$ /秒、基板温度 $-50^{\circ}\text{C}$ ～ $300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚 $0.1\text{nm}$ ～ $5\ \mu\text{m}$ の範囲で適宜選ぶことが望ましい。

[0144] これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1\ \mu\text{m}$ 以下好ましくは $50\text{nm}$ ～ $200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

[0145] 《表示装置》

本発明の表示装置について説明する。

[0146] 本発明の表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは、多色表示装置について説明する。多色表示装置の場合は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる

- 。
- [0147] 発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。
- [0148] また作製順序を逆にして、陰極、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、陽極の順に作製することも可能である。
- [0149] このようにして得られた多色表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。
- [0150] 多色表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。
- [0151] 表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス(パッシブマトリックス)方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。
- [0152] 発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。
- [0153] 《照明装置》  
本発明の照明装置につ居て説明する。
- [0154] 本発明の有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよく、このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより、上記用途に使用

してもよい。

- [0155] また、本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような一種のランプとして使用しても良いし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置(ディスプレイ)として使用しても良い。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリクス(パッシブマトリクス)方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでも良い。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を2種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。
- [0156] 以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。
- [0157] 図1は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。
- [0158] ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。
- [0159] 制御部Bは、表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。
- [0160] 図2は、表示部Aの模式図である。
- [0161] 表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。
- [0162] 図においては、画素3の発光した光が、白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。
- [0163] 配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示していない)。
- [0164] 画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を



受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

[0165] 次に、画素の発光プロセスを説明する。

[0166] 図3は、画素の模式図である。

[0167] 画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

[0168] 図3において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

[0169] 画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

[0170] 制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

[0171] すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて

、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

[0172] ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

[0173] また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

[0174] 本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

[0175] 図4は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図4において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

[0176] 順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。

[0177] パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子が無く、製造コストの低減が計れる。

[0178] 本発明の有機EL素子材料は、また、照明装置として、実質白色の発光を生じる有機EL素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したものでもよい。

[0179] また、複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光または蛍光で発光する材料を、複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたもののいずれでもよいが、本発明に係わる白色有機エレクトロルミネッセンス素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合するだけでよい。発光層もしくは正孔輸送層或いは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分けるなど単

純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターンニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機EL装置と異なり、素子自体が発光白色である。

[0180] 発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF(カラーフィルター)特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係わる白金錯体、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせて白色化すれば良い。

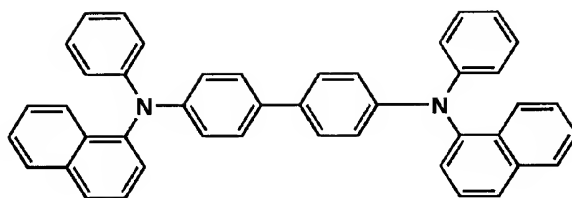
[0181] このように、本発明の白色発光有機EL素子は、前記表示デバイス、ディスプレイに加えて、各種発光光源、照明装置として、家庭用照明、車内照明、また露光光源のような一種のランプとして、また、液晶表示装置のバックライト等、表示装置にも有用に用いられる。

[0182] その他、時計等のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体等の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等、更には表示装置を必要とする一般の家庭用電気器具等広い範囲の用途が挙げられる。

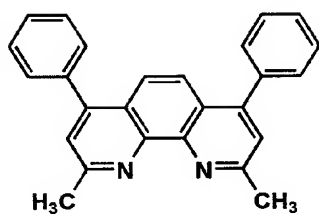
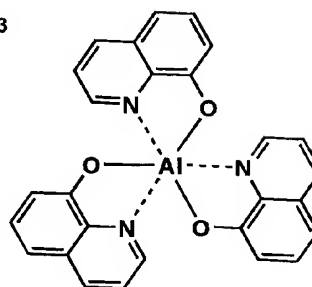
### 実施例

[0183] 以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらに限定されない。

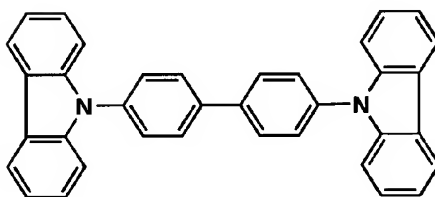
[0184] ここで、実施例1〜6のいずれかにおいて用いられる発光ホスト材料、発光ドーパント、正孔阻止層の形成等に用いられる素材を示す。

$\alpha$ -NPD

BCP

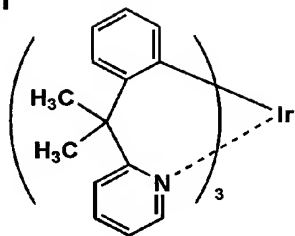
Alq<sub>3</sub>

CBP

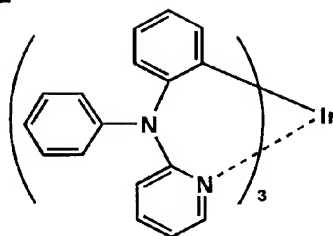


[0185]

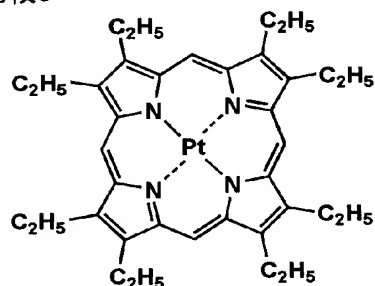
比較1



比較2



比較3



[0186] 実施例1

## 《有機EL素子OLED1-1の作製》

陽極としてガラス上にITOを150nm成膜した基板(NHテクノグラス社製:NA-45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をiso-プロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0187] この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、5つのタンタル製抵抗加熱ボートに、 $\alpha$ -NPD、CBP、Ir-10、BCP、Alq<sub>3</sub>をそれぞれ入れ、真空蒸着装置(第1真空槽)に取付けた。

[0188] 更に、タンタル製抵抗加熱ボートにフッ化リチウムを、タングステン製抵抗加熱ボートにアルミニウムをそれぞれ入れ、真空蒸着装置の第2真空槽に取り付けた。

[0189] まず、第1の真空槽を $4 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した後、 $\alpha$ -NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒~0.2nm/秒で透明支持基板に膜厚25nmの厚さになるように蒸着し、正孔注入/輸送層を設けた。

- [0190] さらに、CBPの入った前記加熱ボートとIr-10の入ったボートをそれぞれ独立に通電して発光ホストであるCBPと発光ドーパントであるIr-10の蒸着速度が100:7になるように調節し膜厚30nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。
- [0191] ついで、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒〜0.2nm/秒で厚さ10nmの正孔阻止層を設けた。更に、Alq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒〜0.2nm/秒で膜厚40nmの電子輸送層を設けた。
- [0192] 次に、前記の如く電子注入層まで製膜した素子を真空のまま第2真空槽に移した後、電子注入層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクが配置されるように装置外部からリモートコントロールして設置した。
- [0193] 第2真空槽を $2 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した後、フッ化リチウム入りのボートに通電して蒸着速度0.01nm/秒〜0.02nm/秒で膜厚0.5nmの陰極バッファ層を設け、次いでアルミニウムの入ったボートに通電して蒸着速度1nm/秒〜2nm/秒で膜厚150nmの陰極をつけた。さらにこの有機EL素子を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス(純度99.999%以上の高純度窒素ガスで置換したグローブボックス)へ移し、図5に示したような内部を窒素で置換した封止構造にして、OLED1-1を作製した。なお、捕水剤である酸化バリウム105は、アルドリッチ社製の高純度酸化バリウム粉末を、粘着剤付きのフッ素樹脂系半透過膜(マイクロテックス S-N TF8031Q 日東電工製)でガラス製封止缶104に貼り付けたものを予め準備して使用した。封止缶と有機EL素子の接着には紫外線硬化型接着剤107を用い、紫外線ランプを照射することで両者を接着し封止素子を作製した。図5において101は透明電極を設けたガラス基板、102が前記正孔注入/輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層等からなる有機EL層、103は陰極を示す。
- [0194] 《有機EL素子OLED1-2〜1-17の作製》  
上記の有機EL素子OLED1-1の作製において、表1に記載のように、発光ドーパントを変更した以外は同様にして、有機EL素子OLED1-2〜1-17を各々作製した。
- [0195] 《有機EL素子OLED1-18の作製方法》

OLED1-1の作製において、発光ホストをCBPからAZ1に変更し、発光ドーパントを本発明の金属錯体(表中に化合物Noで示した)を使用した以外は、OLED1-1と同様にして、有機EL素子OLED1-18を作製した。

[0196] 得られた有機EL素子OLED1-1〜1-18の各々について下記のような評価を行った。

[0197] 《外部取り出し量子効率》

有機EL素子OLED1-1〜1-18の各々の素子を室温(約23℃〜25℃)、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度(L)[cd/m<sup>2</sup>]を測定することにより、外部取り出し量子効率( $\eta$ )を算出した。ここで、発光輝度の測定は、CS-1000(ミノルタ製)を用いた。

[0198] また、外部取り出し量子効率は、各々有機EL素子OLED1-1を100とした時の相対値で表した。

[0199] 《発光寿命》

有機EL素子OLED1-1〜1-18の各々の素子を室温下、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による連続点灯を行い、初期輝度の半分の輝度になるのに要する時間( $\tau_{1/2}$ )を測定した。また、発光寿命は、各々有機EL素子OLED1-1を100とした時の相対値で表した。

[0200] 得られた結果を表1に示す。

[0201] [表1]

素子 No.	発光ドーパント	外部取り出し量子効率	発光寿命	備 考
OLED1-1	Ir-10	100	100	比 較
OLED1-2	Ir-12	98	87	比 較
OLED1-3	比較 1	99	80	比 較
OLED1-4	比較 2	97	75	比 較
OLED1-5	I-4	119	180	本発明
OLED1-6	I-6	117	215	本発明
OLED1-7	I-36	128	177	本発明
OLED1-8	I-41	123	168	本発明
OLED1-9	I-67	118	177	本発明
OLED1-13	P-4	118	177	本発明
OLED1-14	P-6	117	212	本発明
OLED1-15	P-13	121	170	本発明
OLED1-16	P-35	119	166	本発明
OLED1-17	P-42	119	159	本発明
OLED1-18	I-68	129	220	本発明

[0202] 表1から、有機EL素子材料として、本発明に係る金属錯体を用いて作製した有機EL素子は比較素子に比べ、高い発光効率と、発光寿命の長寿命化が達成できていることが明らかである。なお、本発明の素子の発光色は全て青色だった。

[0203] 実施例2

《有機EL素子OLED2-1～2-17の作製》

実施例1において、表2に記載のように、発光ドーパントを変更した以外は実施例1と同様にして有機EL素子OLED2-1～2-17を作製した。

[0204] 《有機EL素子OLED2-18の作製方法》

OLED2-1の作製において、発光ホストをCBPからAZ1に変更し、発光ドーパントを本発明の金属錯体(表中に化合物Noで示した)を使用した以外は、OLED2-1と同様にして、有機EL素子OLED2-18を作製した。

得られた各々の素子の外部取り出し量子効率、発光寿命の測定も実施例1に記載の方法と同様にして行った。

[0205] この時、いずれもOLED2-1の値を100として、各有機EL素子試料の値を相対値で表した。得られた結果を表2に示す。

[0206] [表2]

素子 No.	発光ドーパント	外部取り出し量子効率	発光寿命	備 考
OLED2-1	Ir-1	100	100	比 較
OLED2-2	I-1	112	180	本発明
OLED2-3	I-8	115	160	本発明
OLED2-4	I-47	110	155	本発明
OLED2-5	I-48	112	146	本発明
OLED2-6	I-50	109	135	本発明
OLED2-7	I-51	110	139	本発明
OLED2-8	I-61	110	142	本発明
OLED2-9	I-69	109	140	本発明
OLED2-10	P-1	111	176	本発明
OLED2-11	P-7	114	163	本発明
OLED2-12	P-45	110	145	本発明
OLED2-13	P-48	110	142	本発明
OLED2-14	P-50	109	133	本発明
OLED2-15	P-51	110	142	本発明
OLED2-16	P-61	110	138	本発明
OLED2-17	P-66	109	130	本発明
OLED2-18	I-61	116	181	本発明

[0207] 表2から、本発明の有機EL素子材料を発光ドーパントに用いた有機EL素子は比



較素子に比べ、高い発光効率と、発光寿命が得られることがわかった。なお、本発明の素子の発光色は全て緑色だった。

[0208] 実施例3

《有機EL素子OLED3-1〜3-9の作製》

実施例1において、表3に記載のように、発光ドーパントを変更した以外は実施例1と同様にして有機EL素子OLED3-1〜3-9を作製した。

[0209] 《有機EL素子OLED3-10の作製方法》

OLED3-1の作製において、発光ホストをCBPからAZ1に変更し、発光ドーパントを本発明の金属錯体(表中に化合物Noで示した)を使用した以外は、OLED3-1と同様にして、有機EL素子OLED3-10を作製した。

[0210] 外部取り出し量子効率、発光寿命の測定も実施例1にならって行った。この時、いずれもOLED3-1の値を100としたときの有機EL素子各試料それぞれの相対値で表している。結果を表3に示す。

[0211] [表3]

素子 No.	発光ドーパント	外部取り出し量子効率	発光寿命	備 考
OLED3-1	Ir-9	100	100	比 較
OLED3-2	比較 3	94	95	比 較
OLED3-4	I-20	112	160	本発明
OLED3-5	I-37	112	165	本発明
OLED3-6	I-70	110	180	本発明
OLED3-7	I-71	112	168	本発明
OLED3-8	P-43	110	175	本発明
OLED3-9	P-44	114	148	本発明
OLED3-10	I-71	112	185	本発明

[0212] 表3から、本発明の化合物を発光ドーパントに用いた有機EL素子は比較素子に比べ、高い発光効率と、発光寿命が得られることがわかった。なお、本発明の素子の発光色は全て赤色だった。

[0213] 実施例4

《有機EL素子OLED4-1〜4-13の作製》

実施例2の有機EL素子OLED2-1と全く同様にして、有機EL素子OLED4-1を作製した。次いで、有機EL素子OLED4-1の作製において、正孔阻止材料を表4に記載のように変更した以外は同様にして、有機EL素子OLED4-2〜4-13を作製

した。

[0214] 得られた有機EL素子OLED4-1〜4-13について、外部取り出し量子効率、発光寿命の測定を実施例1に記載の方法を用いて行った。

[0215] 評価結果を示すに当たり、有機EL素子OLED4-1の値を100としたときの有機EL素子各試料の各々の相対値で表した。得られた結果を表4に示す。

[0216] [表4]

素子 No.	正孔阻止材料	外部取り出し量子効率	発光寿命	備 考
OLED4-1	BCP	100	100	比 較
OLED4-2	I-2	114	155	本発明
OLED4-3	I-4	114	143	本発明
OLED4-4	I-10	116	140	本発明
OLED4-5	I-14	115	130	本発明
OLED4-6	I-41	113	130	本発明
OLED4-7	I-61	110	135	本発明
OLED4-8	P-2	113	150	本発明
OLED4-9	P-9	115	137	本発明
OLED4-10	P-4	113	142	本発明
OLED4-11	P-15	115	134	本発明
OLED4-12	P-42	112	123	本発明
OLED4-13	P-61	109	129	本発明

[0217] 表4より、比較の素子に比べて、本発明の素子は、高い発光効率と、発光寿命が得られることがわかった。なお、本発明の有機EL素子の発光色は全て緑色だった。

[0218] 実施例5

《フルカラー表示装置の作製》

(青色発光素子の作製)

実施例1の有機EL素子OLED1-5を青色発光素子として用いた。

[0219] (緑色発光素子の作製)

実施例2の有機EL素子OLED2-7を緑色発光素子として用いた。

[0220] (赤色発光素子の作製)

実施例3の有機EL素子OLED3-6を赤色発光素子として用いた。

[0221] 上記で作製した、各々赤色、緑色、青色発光有機EL素子を同一基板上に並置し、

図1に記載のような形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、図2には、作製した前記表示装置の表示部Aの模式図のみを示した。即ち、同一基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3（発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等）とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示せず）。前記複数の画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

[0222] 該フルカラー表示装置を駆動することにより、輝度が高く、高耐久性を有し、且つ、鮮明なフルカラー動画表示が得られることが判った。

[0223] 実施例6

《白色発光素子および白色照明装置の作製》

実施例1の透明電極基板の電極を20mm×20mmにパターンニングし、その上に実施例1と同様に正孔注入／輸送層として $\alpha$ -NPDを25nmの厚さで製膜し、さらに、CBPの入った前記加熱ボートとI-4の入ったボートおよびIr-9の入ったボートをそれぞれ独立に通電して発光ホストであるCBPと発光ドーパントであるI-4およびIr-9の蒸着速度が100:5:0.6になるように調節し膜厚30nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。

[0224] ついで、BCPを10nm製膜して正孔阻止層を設けた。更に、Alq<sub>3</sub>を40nmで製膜し電子輸送層を設けた。

[0225] 次に、実施例1と同様に、電子注入層の上にステンレス鋼製の透明電極とほぼ同じ形状の正方形穴あきマスクを設置し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nm及び陰極としてアルミニウム150nmを蒸着製膜した。

[0226] この素子を実施例1と同様な方法および同様な構造の封止缶を具備させ平面ランプを作製した。図6に平面ランプの模式図を示した。図6(a)に平面模式を、図6(b)

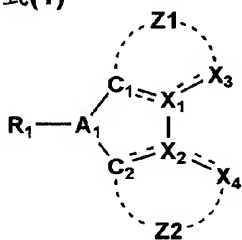
に断面模式図を示す。

[0227] この平面ランプに通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることがわかった。

### 産業上の利用可能性

[0228] 本発明によれば、特定の配位子を持つ金属錯体である有機エレクトロルミネッセンス素子材料と該素子材料を用いて、高い発光効率を示し、且つ、発光寿命の長い有機EL素子、照明装置及び表示装置を提供することができる。該エレクトロルミネッセンス素子材料は、下記一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体を含むことを特徴とする。

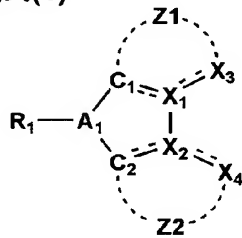
一般式(1)



## 請求の範囲

- [1] 下記一般式(1)で表される配位子を有する金属錯体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

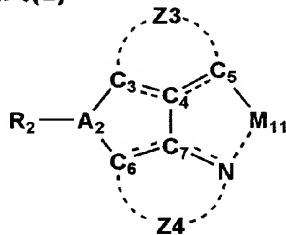
一般式(1)



[式中、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ 、 $X_4$ は、各々独立に炭素原子または窒素原子を表し、 $C_1$ 、 $C_2$ は炭素原子を表し、 $Z1$ は、 $C_1$ 、 $X_1$ 、 $X_3$ と共に、 $Z2$ は、 $C_2$ 、 $X_2$ 、 $X_4$ と共に、各々芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $A_1$ は窒素原子またはホウ素原子を表し、 $R_1$ は置換基を表す。 $C_1$ と $X_1$ との間の結合、 $C_2$ と $X_2$ との間の結合、 $X_1$ と $X_3$ との間の結合、 $X_2$ と $X_4$ との間の結合は単結合または二重結合を表す。]

- [2] 前記一般式(1)の $R_1$ は、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [3] 下記一般式(2)で表される部分構造を有する金属錯体を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式(2)

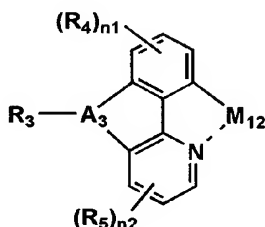


[式中、 $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ 、 $C_6$ 、 $C_7$ は、各々炭素原子を表し、 $Z3$ は、 $C_3$ 、 $C_4$ 、 $C_5$ と共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z4$ は、 $C_6$ 、 $C_7$ 、 $N$ と共に芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $A_2$ は窒素原子ま

たはホウ素原子を表し、 $R_2$  は置換基を表し、 $M_{11}$  は、元素周期表における第8族～第10族の元素を表す。 $C_3$ と $C_4$ との間の結合、 $C_4$ と $C_5$ との間の結合、 $C_6$ と $C_7$ との間の結合、 $C_7$ とNとの間の結合は単結合または二重結合を表す。]

- [4] 前記一般式(2)の $R_2$ は、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [5] 前記金属錯体が、下記一般式(3)またはその互変異性体を部分構造として有する金属錯体であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式(3)



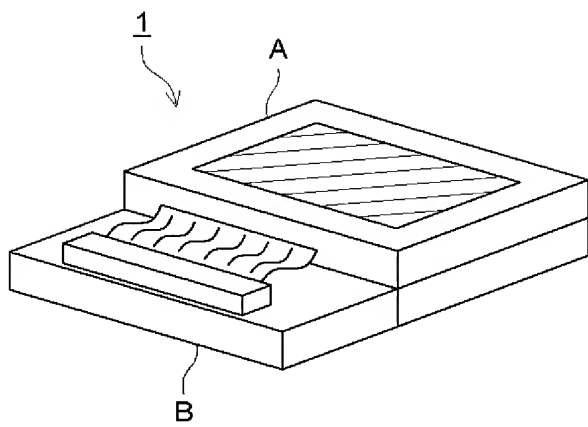
[式中、 $A_3$ は窒素原子またはホウ素原子を表し、 $R_3$ は置換基を表し、 $R_4$ 、 $R_5$ は置換基を表す。 $n_1$ 、 $n_2$ は、各々0～3の整数を表す。 $M_{12}$ は元素周期表における第8族～第10族の元素を表す。]

- [6] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、イリジウムであることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [7] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、イリジウムであることを特徴とする請求の範囲第4項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [8] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、イリジウムであることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [9] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、白金であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [10] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、白金であることを特徴とする請求の範囲第4項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- [11] 前記 $M_{11}$ または前記 $M_{12}$ が、白金であることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の

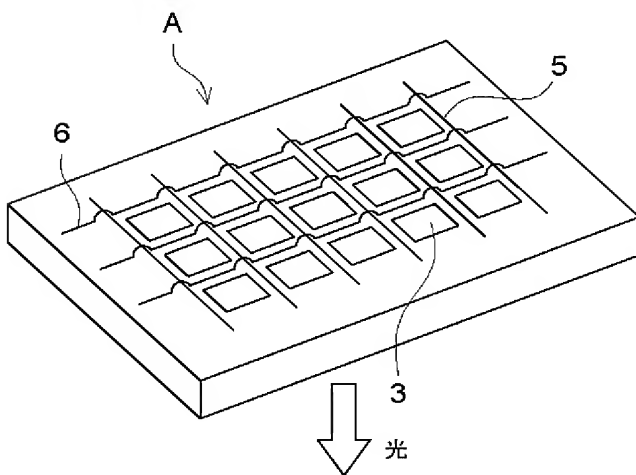
有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

- [12] 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [13] 構成層として、少なくとも一層の発光層を有する事を特徴とする請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [14] 構成層として、少なくとも一層の発光層及び少なくとも一層の正孔阻止層を有することを特徴とする請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [15] 請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。
- [16] 請求の範囲第12項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

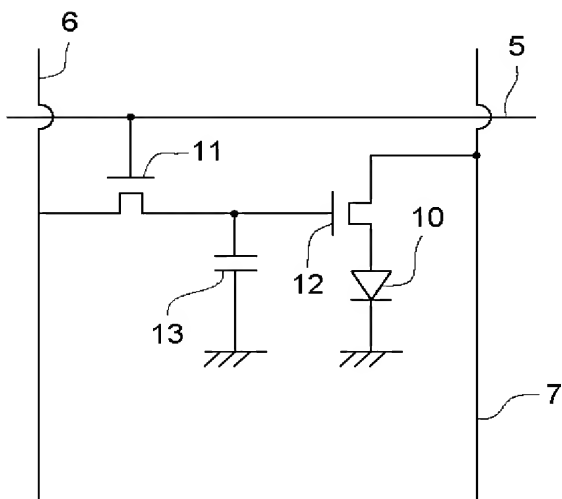
[図1]



[図2]

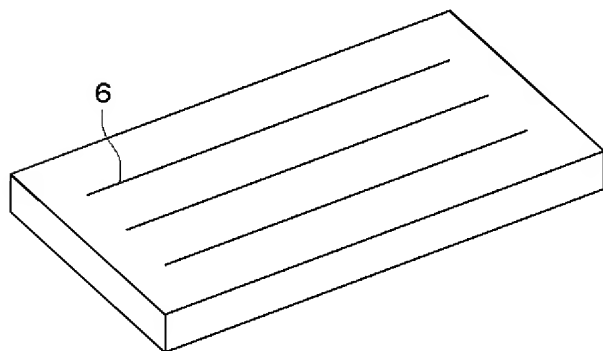
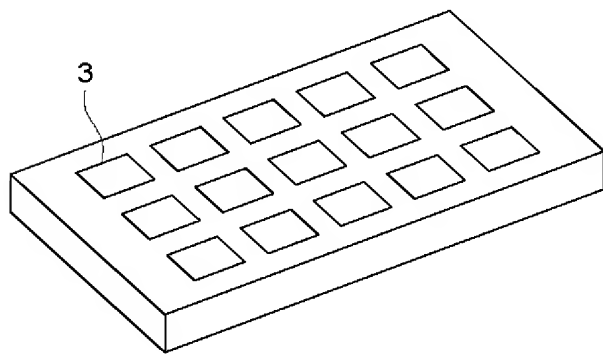
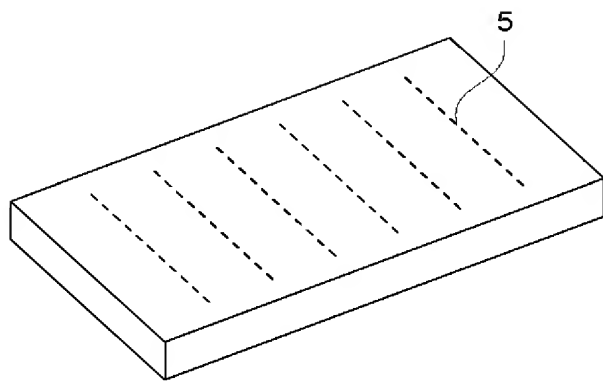


[図3]

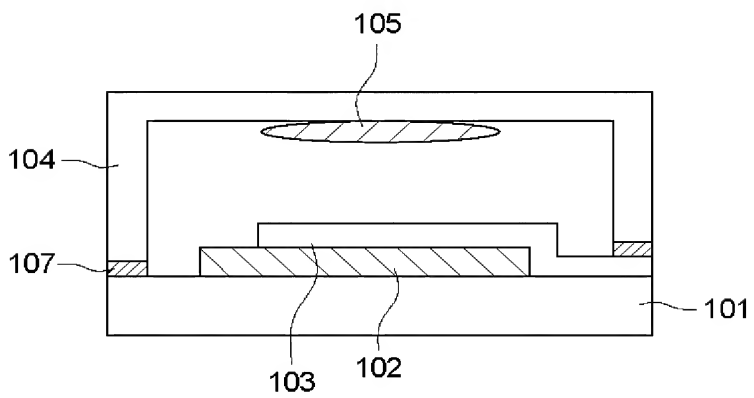




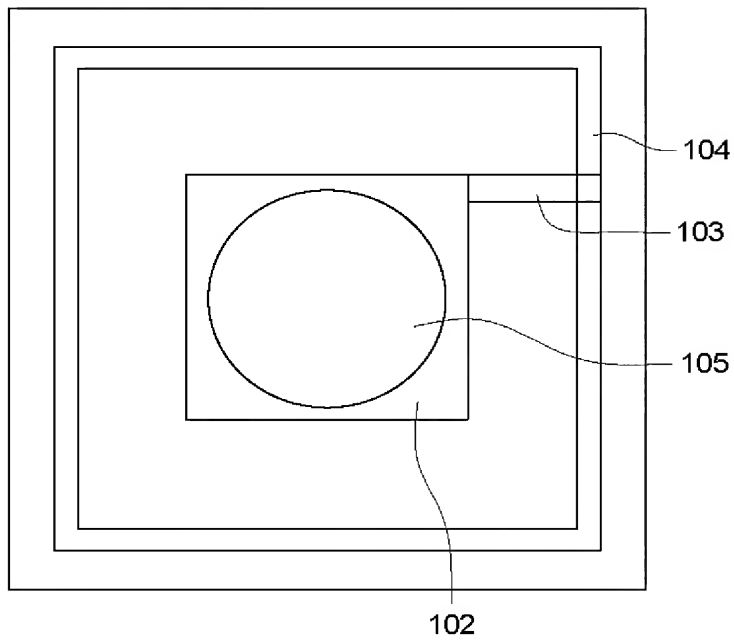
[図4]



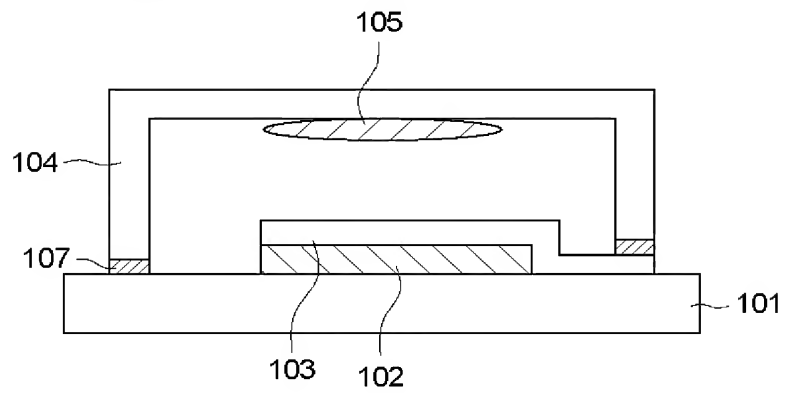
[図5]



[図6(a)]



[図6(b)]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/004678

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C09K11/06, H05B33/14, 33/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C09K11/06, H05B33/14, 33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA (STN), REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2005-23071 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 27 January, 2005 (27.01.05), Claims (Family: none)	1, 2, 12-16
X A	JP 2003-342284 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 03 December, 2003 (03.12.03), Claims (Family: none)	1, 2, 12-16 3-11



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

03 June, 2005 (03.06.05)

Date of mailing of the international search report

21 June, 2005 (21.06.05)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C09K11/06, H05B33/14, 33/22

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C09K11/06, H05B33/14, 33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN)、REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, X	JP 2005-23071 A (日立化成工業株式会社) 2005.01.27, 特許請求の 範囲 (ファミリーなし)	1, 2, 12-16
X A	JP 2003-342284 A (日立化成工業株式会社) 2003.12.03, 特許請求 の範囲 (ファミリーなし)	1, 2, 12-16 3-11

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03.06.2005

国際調査報告の発送日

21.06.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡辺 陽子

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

4V

9279